

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-052870  
(43)Date of publication of application : 23.02.2001

(51)Int.Cl.

H05B 33/14  
C09K 11/06  
H05B 33/12  
H05B 33/22  
H05B 33/26

(21)Application number : 11-345071  
(22)Date of filing : 03.12.1999

(71)Applicant : TDK CORP  
(72)Inventor : KOBORI ISAMU  
INOUE TETSUJI  
FUJITA TETSUJI  
NAKATANI KENJI

(30)Priority

Priority number : 11157176 Priority date : 03.06.1999 Priority country : JP

(54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To efficiently emit the blue light with excellent reliability by including a hole injection transporting compound and/or an electron injection transporting compound included in a hole transfer layer and/or an electron transfer layer as a host compound in a blue light emitting layer.

SOLUTION: As a host compound to be included in a blue light emitting layer, a compound, which emits the blue light, such as a phenylanthracene derivative is desirably used. In the case where the host material of the blue light emitting layer does not have the blue light emitting characteristic, a dopant can be used so as to change the light emitting characteristic for blue light emission, and as a dopant, a styryl group amine compound or the like is used. As the blue light emitting layer, a mixture layer of an electron injection and transfer compound (A) and a hole injection and transfer compound (B) can be used. In this case, the component A and the component B can be mixed evenly, or distributed in the film thickness direction so that concentration of the component B is higher at a hole transfer layer side and that concentration of the component A is higher at the electron transfer layer side.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 29.07.2005

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision  
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-52870

(P2001-52870A)

(43) 公開日 平成13年2月23日 (2001.2.23)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テームト* (参考)
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	B
C 0 9 K 11/06	6 2 0	C 0 9 K 11/06	6 2 0
H 0 5 B 33/12		H 0 5 B 33/12	C
			E
33/22		33/22	A
審査請求 未請求 請求項の数27 O L (全 49 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願平11-345071

(22) 出願日 平成11年12月3日 (1999.12.3)

(31) 優先権主張番号 特願平11-157176

(32) 優先日 平成11年6月3日 (1999.6.3)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000003067

ティーディーケイ株式会社

東京都中央区日本橋1丁目13番1号

(72) 発明者 小堀 勇

東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケイ株式会社内

(72) 発明者 井上 鉄司

東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケイ株式会社内

(74) 代理人 100082865

弁理士 石井 陽一

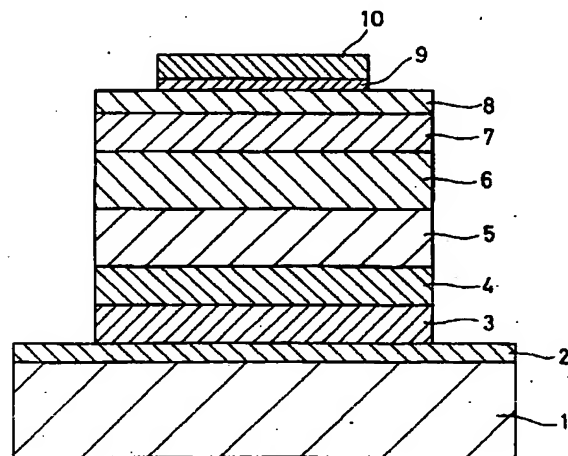
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機EL素子

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 青色発光光が効率よく得られ、さらには青色発光を含めた多色発光への対応が可能で、かつ高輝度で長寿命の有機EL素子を提供する。

【解決手段】 発光層に隣接するホール輸送層4および/または電子輸送層7中のホール注入輸送性化合物および/または電子注入輸送性化合物をホスト材料とする青色発光層を設けるか、青色発光層とアルカリ金属のハロゲン化合物または酸化物を構成材料とした陰極とを組み合わせた有機EL素子とする。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 発光層と、この発光層に隣接するホール輸送層および／または電子輸送層を有し、前記発光層が青色発光層を含む1層または2層以上で構成され、前記青色発光層が前記ホール輸送層および／または電子輸送層中のホール注入輸送性化合物および／または電子注入輸送性化合物をホスト化合物として含有する有機EL素子。

【請求項2】 ホスト化合物が青色発光する化合物である請求項1の有機EL素子。

【請求項3】 ホスト化合物がフェニルアントラセン誘導体から選ばれる請求項2の有機EL素子。

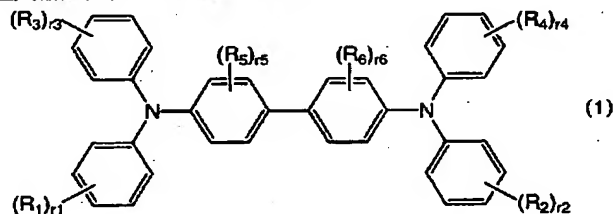
【請求項4】 ドーバントを含有し、ドーバントにより青色発光する請求項1の有機EL素子。

【請求項5】 ホール輸送層および電子輸送層を有し、青色発光層が前記ホール輸送層および電子輸送層中のホール注入輸送性化合物および電子注入輸送性化合物の混合層である請求項1の有機EL素子。

【請求項6】 青色発光層がフェニルアントラセン誘導体および芳香族三級アミンの混合層である請求項5の有機EL素子。

【請求項7】 混合層でのホール注入輸送性化合物および電子注入輸送性化合物の濃度分布が均一である請求項5または6の有機EL素子。

【請求項8】 混合層でのホール注入輸送性化合物および電子注入輸送性化合物が膜厚方向で濃度分布を有し、ホール輸送層側にてホール注入輸送性化合物の濃度が高く、電子輸送層側にて電子注入輸送性化合物の濃度が高\*



【式(1)において、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$  および  $R_4$  は、それぞれアリール基、アルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基またはハロゲン基を表し、 $r_1$ 、 $r_2$ 、 $r_3$  および  $r_4$  は、それぞれ0～5の整数であり、 $r_1$ 、 $r_2$ 、 $r_3$  および  $r_4$  が、それぞれ2以上の整数のとき、隣接する $R_1$ 同士、 $R_2$ 同士、 $R_3$ 同士および $R_4$ 同士は、それぞれ互いに結合して環を形成してもよい。 $R_5$  および  $R_6$  は、それぞれアルキル基、アルコキシ基、アミノ基またはハロゲン基を表し、 $r_5$  および  $r_6$  は、それぞれ0～4の整数である。】

\*い請求項5または6の有機EL素子。

【請求項9】 さらにドーバントがドーブされた混合層である請求項5～8のいずれかの有機EL素子。

【請求項10】 混合層全体で青色発光する請求項5～9のいずれかの有機EL素子。

【請求項11】 電子輸送層側に設けられる陰極の構成材料が、アルカリ金属のハロゲン化物および酸化物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含む請求項1～10のいずれかの有機EL素子。

10 【請求項12】 陰極の構成材料がRbおよびCsのハロゲン化物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含む請求項11の有機EL素子。

【請求項13】 陰極と、青色発光層を含む1層または2層以上の発光層と、ホール輸送層および／または注入層と、陽極とを有し、前記陰極の構成材料が、アルカリ金属のハロゲン化物および酸化物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含む有機EL素子。

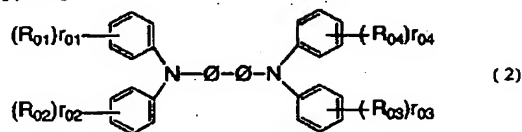
【請求項14】 青色発光層が青色発光する化合物としてフェニルアントラセン誘導体を含有する請求項13の有機EL素子。

20 【請求項15】 ホール輸送および／または注入層が芳香族三級アミンを含有する請求項13または14の有機EL素子。

【請求項16】 芳香族三級アミンが式(1)および式(2)で表される化合物から選ばれる請求項15の有機EL素子。

【化1】

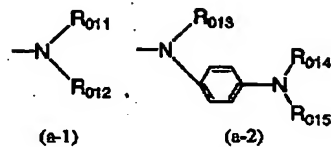
【化2】



【式(2)において、 $\phi$ はフェニレン基を表し、 $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$  および  $R_{04}$  は、それぞれ、アルキル基、アリール基、ジアリールアミノアリール基、

【化3】

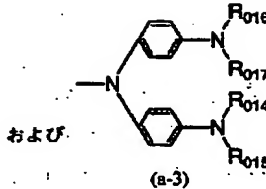
3



(a-2)

(ここで、 $R_{011}$ 、 $R_{012}$ 、 $R_{013}$ 、 $R_{014}$ 、 $R_{015}$ 、 $R_{016}$ および $R_{017}$ は、それぞれ、アリール基を表す。)

4



および

のいずれかを表し、 $R_{01} \sim R_{04}$ の少なくとも一つはジアリールアミノアリール基、または前記(a-1)～(a-3)のいずれかを表す。 $r_{01}$ 、 $r_{02}$ 、 $r_{03}$ および $r_{04}$ は、それぞれ0～5の整数であり、 $r_{01} + r_{02} + r_{03} + r_{04}$ は1以上の整数である。 $r_{01}$ 、 $r_{02}$ 、 $r_{03}$ および $r_{04}$ が、それぞれ2以上の整数であるとき、隣接する $R_{01}$ 同士、 $R_{02}$ 同士、 $R_{03}$ 同士および $R_{04}$ 同士は、それぞれ互いに結合して環を形成してもよい。]

【請求項17】 ホール注入層およびホール輸送層を有し、陽極側のホール注入層が式(2)で表される化合物を含有し、発光層側のホール輸送層が式(1)で表される化合物を含有する請求項15または16の有機EL素子。

【請求項18】 青色発光層のほか、これとは発光波長の異なる少なくとも1層の発光層を有する請求項1～17のいずれかの有機EL素子。

【請求項19】 青色発光層とは発光波長の異なる少なくとも1層の発光層がホール注入輸送性化合物および電子注入輸送性化合物の混合層である請求項18の有機EL素子。

【請求項20】 さらにドーパントがドーパされた混合層である請求項19の有機EL素子。

【請求項21】 2層の発光層を有する請求項18～20のいずれかの有機EL素子。

【請求項22】 3層の発光層を有する請求項18～20のいずれかの有機EL素子。

【請求項23】 白色発光する請求項21または22の有機EL素子。

【請求項24】 カラーフィルターを用い、このカラーフィルターと組み合わせて、発光色を調整させる請求項1～23のいずれかの有機EL素子。

【請求項25】 互いに対向する、少なくとも一方が透明な一対の電極を有し、この一対の電極間に前記発光層を含む有機層が挟持されており、この一対の電極の透明電極側に前記カラーフィルターが設置されている請求項24の有機EL素子。

【請求項26】 それぞれが複数の電極で構成され、互いに交差し、かつ対向する位置に配列された、少なくとも一方が透明な一対のXYマトリックス型電極を有し、交差した前記電極間に前記発光層を含む有機層が挟持さ

れており、この交差部分が画素を形成し、この画素の透明電極側に前記カラーフィルターが設置されている請求項24の有機EL素子。

【請求項27】 前記画素の周辺部であって、前記カラーフィルターの設置部位近傍にブラックマトリックスが設置されている請求項26の有機EL素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、有機EL（電界発光）素子に関する。

【0002】

【従来の技術】有機EL素子は、蛍光性有機化合物を含む薄膜を陰極と陽極とで挟んだ構成を有し、薄膜に電子および正孔を注入して再結合させることにより、励起子（エキシトン）を生成させ、このエキシトンが失活する際の光の放出（蛍光・燐光）を利用して発光する素子である。

【0003】有機EL素子は、10V以下の低電圧で100～100,000cd/m<sup>2</sup>程度の高輝度の面発光が可能である。また、蛍光物質の種類を選択することにより、青色から赤色までの発光が可能である。

【0004】一方、有機EL素子の問題点は、発光寿命が短く、保存耐久性、信頼性が低いことであり、この原因としては、

(1)有機化合物の物理的变化

(結晶ドメインの成長などにより界面の不均一化が生じ、素子の電荷注入能の劣化・短絡・絶縁破壊の原因となる。特に分子量500以下の低分子化合物を用いると結晶粒の出現・成長が起こり、膜性が著しく低下する。また、陽極に用いられるITO等の界面が荒れていても、顕著な結晶粒の出現・成長が起こり、発光効率の低下や、電流のリークを起こし、発光しなくなる。また、部分的非発光部であるダークスポットの原因にもなる。)

【0005】(2)陰極の酸化・剥離

(電子の注入を容易にするために、陰極には仕事関数の小さな金属としてNa・K・Li・Mg・Ca・Al等が用いられてきたが、これらの金属は大気中の水分や酸素と反応したり、有機層と陰極との剥離が起こり、電荷注入ができなくなる。特に、高分子化合物などを用い、スピンコートなどで成膜した場合、成膜時の残留溶媒・

水分や分解物が電極の酸化反応を促進し、電極の剥離が起こり、部分的な非発光部を生じさせる。)

【0006】(3) 発光効率が低く、発熱量が多いこと(有機化合物中に電流を流すので、高い電界強度下に有機化合物を置かねばならず、発熱からは逃れられない。その熱のため、有機化合物の溶融・結晶化・熱分解などにより、素子の劣化・破壊が起こる。)

【0007】(4) 有機化合物層の光化学的变化・電気化学的变化

(有機物に電流を流すことで有機物が劣化し、電流トラップ・励起子トラップ等の欠陥を生じ、駆動電圧の上昇、輝度の低下等の素子劣化が起こる。)などが挙げられる。

【0008】有機EL素子は、上述のように、多色発光の実現を可能にするものであるが、有機EL素子の多色発光化に対応するものとして、積層型白色発光有機EL素子が提案されている[佐藤佳晴、信学技報、OMEGA-94-78(1995-03)]。この場合の発光層は、亜鉛のオキサゾール錯体を用いた青色発光層、トリス(8-キノリノラト)アルミニウムを用いた緑色発光層およびトリス(8-キノリノラト)アルミニウムに赤色の蛍光色素(P-660、DCM1)をドーブした赤色発光層を積層したものである。

【0009】また、本発明者等は、先に、多色発光を目的とするものとして、上述のような素子では材料選定や発光色の調整の自由度が大きく制限されることなどから、ドーバントの添加により多色発光させる技術を提案している(WO98/08360号)。具体的には、トリス(8-キノリノラト)アルミニウムとN,N,N',N'-テトラキス-(3-ピフェニル-1-イル)ベンジジンとの混合層にルブレナやクマリン誘導体のドーバントを添加するものであり、混合層における混合比やドーバント種を変えることで、その発光特性を変化させ、多色発光を可能にするものである。

【0010】しかし、そこに具体的に開示される発光色は赤～緑に対応するものであり、青に対応するものではない。

【0011】そこで、青の発光色を安定して得ることが望まれるが、それに付随する特有の問題があり、発光材料のみならず組み合わせる種々の材料の選定が必要となる。

【0012】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、青色発光光が効率よく得られる信頼性に優れた有機EL素子を提供することであり、さらには青色発光を含めた多色発光への対応が可能で、かつ高輝度で長寿命の有機EL素子を提供することである。さらには、その優れた特性を生かし、さらにカラーフィルターを組み合わせることにより多色発光有機ELディスプレイの作製が可能になる有機EL素子を提供することである。

【0013】

【課題を解決するための手段】このような目的は、下記の本発明によって達成される。

(1) 発光層と、この発光層に隣接するホール輸送層および/または電子輸送層を有し、前記発光層が青色発光層を含む1層または2層以上で構成され、前記青色発光層が前記ホール輸送層および/または電子輸送層中のホール注入輸送性化合物および/または電子注入輸送性化合物をホスト化合物として含有する有機EL素子。

(2) ホスト化合物が青色発光する化合物である上記(1)の有機EL素子。

(3) ホスト化合物がフェニルアントラセン誘導体から選ばれる上記(2)の有機EL素子。

(4) ドーバントを含有し、ドーバントにより青色発光する上記(1)の有機EL素子。

(5) ホール輸送層および電子輸送層を有し、青色発光層が前記ホール輸送層および電子輸送層中のホール注入輸送性化合物および電子注入輸送性化合物の混合層である上記(1)の有機EL素子。

(6) 青色発光層がフェニルアントラセン誘導体および芳香族三級アミンの混合層である上記(5)の有機EL素子。

(7) 混合層でのホール注入輸送性化合物および電子注入輸送性化合物の濃度分布が均一である上記(5)または(6)の有機EL素子。

(8) 混合層でのホール注入輸送性化合物および電子注入輸送性化合物が膜厚方向で濃度分布を有し、ホール輸送層側にてホール注入輸送性化合物の濃度が高く、電子輸送層側にて電子注入輸送性化合物の濃度が高い上記(5)または(6)の有機EL素子。

(9) さらにドーバントがドーブされた混合層である上記(5)～(8)のいずれかの有機EL素子。

(10) 混合層全体で青色発光する上記(5)～(9)のいずれかの有機EL素子。

(11) 電子輸送層側に設けられる陰極の構成材料が、アルカリ金属のハロゲン化合物および酸化物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含む上記(1)～(10)のいずれかの有機EL素子。

(12) 陰極の構成材料がRbおよびCsのハロゲン化合物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含む上記(11)の有機EL素子。

(13) 陰極と、青色発光層を含む1層または2層以上の発光層と、ホール輸送層および/または注入層と、陽極とを有し、前記陰極の構成材料が、アルカリ金属のハロゲン化合物および酸化物から選ばれる少なくとも1種の化合物を含む有機EL素子。

(14) 青色発光層が青色発光する化合物としてフェニルアントラセン誘導体を含有する上記(13)の有機EL素子。

(15) ホール輸送および/または注入層が芳香族三

級アミンを含有する上記(13)または(14)の有機EL素子。

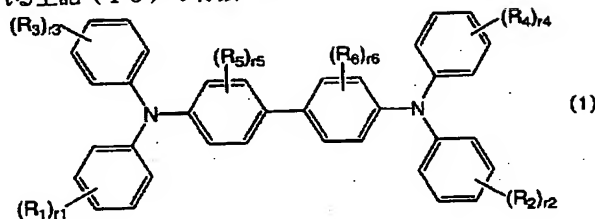
\*素子。

[0014]

(16) 芳香族三級アミンが式(1)および式(2)

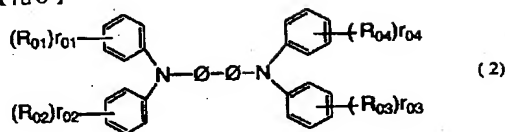
[化4]

で表される化合物から選ばれる上記(15)の有機EL\*



[0015] [式(1)において、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$  および  $R_4$  は、それぞれアリール基、アルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基またはハロゲン基を表し、 $r_1$ 、 $r_2$ 、 $r_3$  および  $r_4$  は、それぞれ0~5の整数であり、 $r_1$ 、 $r_2$ 、 $r_3$  および  $r_4$  が、それぞれ2以上の整数のとき、隣接する $R_1$ 同士、 $R_2$ 同士、 $R_3$ 同士および $R_4$ 同士は、それぞれ互いに結合して環を形成してもよい。 $R_5$  および  $R_6$  は、それぞれアルキル基、アルコキシ基、アミノ基またはハロゲン基を表し、 $r_5$  および  $r_6$  は、それぞれ0~4の整数である。]

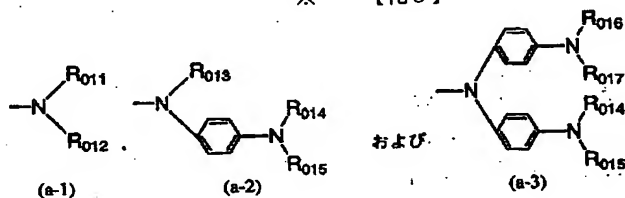
\*[化5]



[0017] [式(2)において、 $\phi$ はフェニレン基を表し、 $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$  および  $R_{04}$  は、それぞれ、アルキル基、アリール基、ジアリールアミノアリール基、

[0018]

\*[化6]



(ここで、 $R_{011}$ 、 $R_{012}$ 、 $R_{013}$ 、 $R_{014}$ 、 $R_{015}$ 、 $R_{016}$  および  $R_{017}$  は、それぞれ、アリール基を表す。)

[0019] のいずれかを表し、 $R_{01} \sim R_{04}$  の少なくとも一つはジアリールアミノアリール基、または前記(a-1)~(a-3)のいずれかを表す。 $r_{01}$ 、 $r_{02}$ 、 $r_{03}$  および  $r_{04}$  は、それぞれ0~5の整数であり、 $r_{01} + r_{02} + r_{03} + r_{04}$  は1以上の整数である。 $r_{01}$ 、 $r_{02}$ 、 $r_{03}$  および  $r_{04}$  が、それぞれ2以上の整数であるとき、隣接する $R_{01}$ 同士、 $R_{02}$ 同士、 $R_{03}$ 同士および $R_{04}$ 同士は、それぞれ互いに結合して環を形成してもよい。]

(17) ホール注入層およびホール輸送層を有し、陽極側のホール注入層が式(2)で表される化合物を含有し、発光層側のホール輸送層が式(1)で表される化合物を含有する上記(15)または(16)の有機EL素子。

(18) 青色発光層のほかに、これとは発光波長の異なる少なくとも1層の発光層を有する上記(1)~(17)のいずれかの有機EL素子。

(19) 青色発光層とは発光波長の異なる少なくとも1層の発光層がホール注入輸送性化合物および電子注入輸送性化合物の混合層である上記(18)の有機EL素子。

子。

(20) さらにドーバントがドーブされた混合層である上記(19)の有機EL素子。

(21) 2層の発光層を有する上記(18)~(20)のいずれかの有機EL素子。

(22) 3層の発光層を有する上記(18)~(20)のいずれかの有機EL素子。

(23) 白色発光する上記(21)または(22)の有機EL素子。

(24) カラーフィルターを用い、このカラーフィルターと組み合わせて、発光色を変調させる上記(1)~(23)のいずれかの有機EL素子。

(25) 互いに対向する、少なくとも一方が透明な一対の電極を有し、この一対の電極間に前記発光層を含む有機層が挟持されており、この一対の電極の透明電極側に前記カラーフィルターが設置されている上記(24)の有機EL素子。

(26) それぞれが複数の電極で構成され、互いに交差し、かつ対向する位置に配列された、少なくとも一方

が透明な一对のXYマトリックス型電極を有し、交差した前記電極間に前記発光層を含む有機層が挟持されており、この交差部分が画素を形成し、この画素の透明電極側に前記カラーフィルターが設置されている上記(24)の有機EL素子。

(27) 前記画素の周辺部であって、前記カラーフィルターの設置部位近傍にブラックマトリックスが設置されている上記(26)の有機EL素子。

【0020】

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳細に説明する。本発明の有機EL素子は、発光層に隣接するホール輸送層および/または電子輸送層中のホール注入輸送性化合物および/または電子注入輸送性化合物をホスト材料とする青色発光層を有するものであるか、あるいはまた青色発光層を有し、かつ陰極材料としてアルカリ金属の塩化物および酸化物から選ばれる化合物を用いたものである。好ましくは、これらの構成を併せもつものであり、青色発光層は、前記のホール注入輸送性化合物と電子注入輸送性化合物との混合層であることが好ましい。さらに詳述する。

【0021】<青色発光層>本発明の有機EL素子は青色発光層を有する。この場合の青色発光する化合物としてはフェニルアントラセン誘導体が好ましく用いられる。これらについては特開平8-12600号公報に記載されている。なかでも、フェニルアントラセン誘導体としては式(A)で表される化合物が好ましい。

$A_1 - L - A_2$  (A)

【0022】式(A)において、 $A_1$  および  $A_2$  は、各々モノ(オルト置換フェニル)アントリル基またはジ(オルト置換フェニル)アントリル基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。Lは単結合または二価の連結基を表す。

【0023】 $A_1$ 、 $A_2$  で表されるモノ(オルト置換フェニル)フェニルアントリル基またはジ(オルト置換フェニル)フェニルアントリル基は、フェニル基の2位または6位(アントラセン環への結合位置に対してオルト位)に、アリール基、複素芳香環基もしくはアリールエチニル基を有するものである。また、オルト位以外に置換基を有するものであってもよく、置換基を有する場合の置換基としては、アルキル基、アリール基、アリールエチニル基、アルコキシ基、アミノ基等が挙げられ、これらの置換基はさらに置換されていてもよい。これらの置換基については後述する。

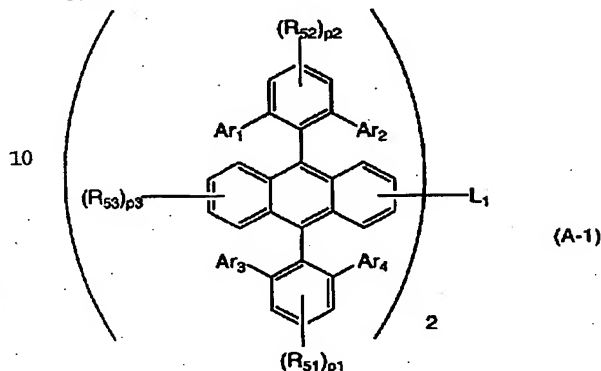
【0024】また、アントラセン環におけるフェニル基の結合位置はアントラセン環の9位、10位であることが好ましい。

【0025】式(A)において、Lは単結合または二価の基を表すが、Lで表される二価の基としてはアルキレン基等が介在してもよいアリーレン基が好ましい。このようなアリーレン基については後述する。

【0026】式(A)で示されるフェニルアントラセン誘導体のなかでも、式(A-1)、式(A-2)で示されるものが好ましい。

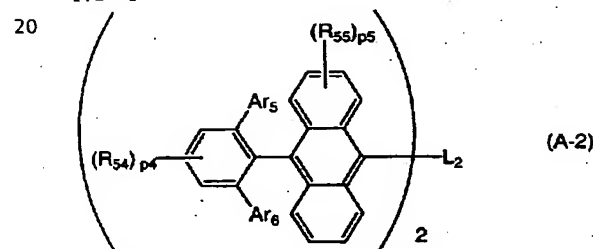
【0027】

【化7】



【0028】

【化8】



【0029】式(A-1)において、 $A_1$ 、 $A_2$  は、各々水素原子、アリール基、複素芳香環基またはアリールエチニル基を表し、 $A_1$  および  $A_2$  の少なくとも一方は、各々アリール基、複素芳香環基またはアリールエチニル基である。R<sub>51</sub> および R<sub>52</sub> は、各々アルキル基、アリール基、アリールエチニル基、アルコキシ基、またはアミノ基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。p1 および p2 は、各々、0~3の整数を表し、p1 および p2 が、各々、2以上の整数であるとき、R<sub>51</sub> 同士および R<sub>52</sub> 同士は各々同一でも異なるものであってもよい。R<sub>53</sub> は、アルキル基またはアリール基を表し、p3 は、各々、0~3の整数を表す。p3 が、2以上の整数であるとき、R<sub>53</sub> は各々同一でも異なるものであってもよい。L<sub>1</sub> は単結合またはアリーレン基を表し、アリーレン基はアルキレン基、-O-、-S-または-NR- (ここで、Rはアルキル基またはアリール基を表す。) が介在するものであってもよい。

【0030】式(A-2)において、 $A_1$  および  $A_2$  は、各々水素原子、アリール基、複素芳香環基またはアリールエチニル基を表し、 $A_1$  および  $A_2$  の少なくとも一方はアリール基、複素芳香環基またはアリールエチニル基である。R<sub>54</sub> は、各々アルキル基、アリール



基、アリーールエテニル基、アルコキシ基、またはアミノ基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。p4は、各々、0~3の整数を表し、p4が、各々、2以上の整数であるとき、R<sub>11</sub>同士は各々同一でも異なるものであってもよい。R<sub>11</sub>は、アルキル基またはアリーール基を表し、p5は、各々、0~4の整数を表す。p5が、2以上の整数であるとき、R<sub>11</sub>は各々同一でも異なるものであってもよい。L<sub>1</sub>は単結合またはアリーレン基を表し、アリーレン基はアルキレン基、-O-、-S-または-NR-（ここで、Rはアルキル基またはアリーール基を表す。）が介在するものであってもよい。L<sub>1</sub>は単結合またはアリーレン基を表し、アリーレン基はアルキレン基、-O-、-S-または-NR-（ここで、Rはアルキル基またはアリーール基を表す。）が介在するものであってもよい。

【0031】Ar<sub>1</sub>~Ar<sub>4</sub>およびR<sub>11</sub>~R<sub>12</sub>で表されるアリーール基としては、炭素数6~20のものが好ましく、さらにはフェニル基、トリル基等の置換基を有するものであってもよい。具体的には、フェニル基、(o-, m-, p-)トリル基、ピレニル基、ナフチル基、アントリル基、ビフェニル基、フェニルアントリル基、トリルアントリル基等が挙げられる。

【0032】Ar<sub>1</sub>~Ar<sub>4</sub>で表される複素芳香環基としては、フリル基、ベンゾフリル基、チエニル基、ピチエニル基、ベンゾチエニル基、ピロリル基、N-アリルピロリル基、インドリル基、ピリジル基、ビピリジル基、キノリル基、キノキサリル基、オキサゾール基、ベンゾオキサゾール基、オキサジアゾール基、チアゾール基、ベンゾチアゾール基、チアジアゾール基、イミダゾール基等が好ましく、さらには、炭素数42以下のアリーール基、炭素数12以下のアルキル基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基等の置換基を有するものであってもよい。具体的には、置換基として、フェニル基、(o-, m-, p-)ビフェニル基、(1, 2)ナフチル基、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、メトキシ基、エトキシ基、フェノキシ基、(o-, m-, p-)トリル基等が挙げられる。

【0033】Ar<sub>1</sub>~Ar<sub>4</sub>、R<sub>11</sub>およびR<sub>12</sub>で表されるアリーールエテニル基としては、2-フェニルエテニル基、2, 2-ジフェニルエテニル基等が好ましく、さらにはアリーール基、アルキル基、アルコキシ基、アリーロキシ基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基等の置換基を有するものであってもよい。具体的には、置換基として、フェニル基、(o-, m-, p-)ビフェニル基、(1, 2)ナフチル基、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、メトキシ基、エトキシ基、フェノキシ基、(o-, m-, p-)トリル基等が挙げられる。

【0034】R<sub>11</sub>~R<sub>12</sub>で表されるアルキル基としては、直鎖状でも分岐を有するものであってもよく、炭素数1~10、さらには1~4の置換もしくは無置換のア

ルキル基が好ましい。特に、炭素数1~4の無置換のアルキル基が好ましく、具体的にはメチル基、エチル基、(n-, i-)プロピル基、(n-, i-, s-, t-)ブチル基等が挙げられる。

【0035】R<sub>11</sub>およびR<sub>12</sub>で表されるアルコキシ基としては、アルキル基部分の炭素数が1~6のものが好ましく、具体的にはメトキシ基、エトキシ基等が挙げられる。アルコキシ基は、さらに置換されていてもよい。

【0036】R<sub>11</sub>およびR<sub>12</sub>で表されるアミノ基は、無置換でも置換基を有するものであってもよいが、置換基を有することが好ましく、この場合の置換基としてはアルキル基（メチル基、エチル基等）、アリーール基（フェニル基等）などが挙げられる。具体的にはジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジ(m-トリル)アミノ基等が挙げられる。

【0037】式(A-1)において、p1およびp2は、各々、0または1~3の整数を表し、特に、0~2であることが好ましい。p1およびp2が、各々、1~3の整数、特に1または2であるとき、R<sub>11</sub>およびR<sub>12</sub>は、各々、メチル基、フェニル基であることが好ましい。

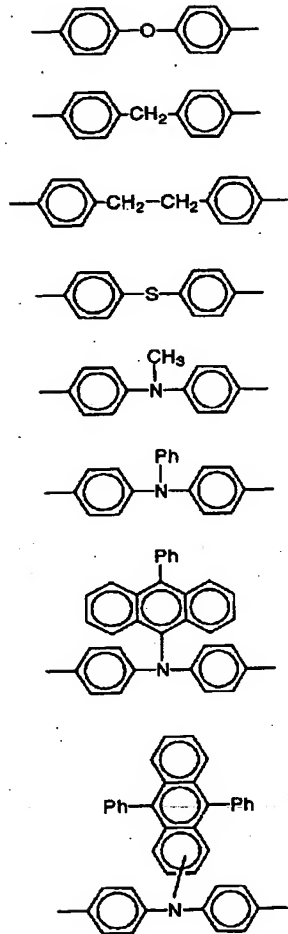
【0038】式(A-1)において、p3は、各々、0~3の整数を表し、特に、0~2であることが好ましい。p3が、各々、1~3の整数、特に1または2であるとき、R<sub>11</sub>は、各々、メチル基、フェニル基であることが好ましい。

【0039】式(A-1)において、R<sub>11</sub>~R<sub>12</sub>は同一でも異なるものであってもよく、R<sub>11</sub>、R<sub>12</sub>とR<sub>13</sub>とが各々複数存在するとき、R<sub>11</sub>同士、R<sub>12</sub>同士、R<sub>13</sub>同士は各々同一でも異なるものであってもよい。

【0040】式(A-1)において、L<sub>1</sub>は単結合またはアリーレン基を表す。L<sub>1</sub>で表されるアリーレン基としては、無置換であることが好ましく、具体的にはフェニレン基、ビフェニレン基、アントリレン基等の通常のアリーレン基の他、2個ないしそれ以上のアリーレン基が直接連結したものが挙げられる。L<sub>1</sub>としては、単結合、p-フェニレン基、4, 4'-ビフェニレン基等が好ましい。

【0041】また、L<sub>1</sub>で表されるアリーレン基は、2個ないしそれ以上のアリーレン基がアルキレン基、-O-、-S-または-NR-が介在して連結するものであってもよい。ここで、Rはアルキル基またはアリーール基を表す。アルキル基としてはメチル基、エチル基等が挙げられ、アリーール基としてはフェニル基等が挙げられる。なかでも、アリーール基が好ましく、上記のフェニル基のほか、A<sub>1</sub>、A<sub>2</sub>であってもよく、さらにはフェニル基にA<sub>1</sub>またはA<sub>2</sub>が置換したものであってもよい。また、アルキレン基としてはメチレン基、エチレン基等が好ましい。このようなアリーレン基の具体例を以下に示す。

【0042】  
【化9】



【0043】次に、式(A-2)について説明すると、式(A-2)において、 $R_{11}$ は式(A-1)における $R_{11}$ または $R_{12}$ と、また $R_{13}$ は式(A-1)における $R_{11}$ と、 $p4$ は式(A-1)における $p1$ または $p2$ と、さらに $L_2$ は式(A-1)における $L_1$ とそれぞれ同義であり、好ましいものも同様である。

【0044】また、式(A-2)において、 $p5$ は、各々、0~4の整数を表し、特に、0~2であることが好ましい。 $p5$ が、各々、1~3の整数、特に1または2

40 【化11】

ることが好ましい。

【0045】式(A-2)において、 $R_{11}$ と $R_{13}$ とは同一でも異なるものであってもよく、 $R_{11}$ と $R_{13}$ が各々複数存在するとき、 $R_{11}$ 同士、 $R_{13}$ 同士は、各々同一でも異なるものであってもよい。

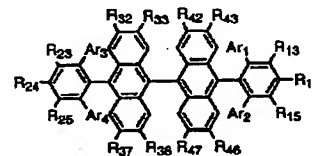
【0046】式(A-1)において、 $Ar_1$ および $Ar_2$ の少なくとも一方、 $Ar_1$ および $Ar_2$ の少なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、スチリル基、フェニルスチリル基、ジフェニルスチリル基、チエニル基、メチルチエニル基、フェニルチエニル基またはフェニルピチエニル基であることが好ましい。さらには $Ar_1$ および $Ar_2$ の少なくとも一方、 $Ar_1$ および $Ar_2$ の少なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基またはターフェニル基であり、 $L_1$ は単結合であることが好ましい。

【0047】式(A-2)において、 $Ar_1$ および $Ar_2$ の少なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基、ターフェニル基、スチリル基、フェニルスチリル基、ジフェニルスチリル基、チエニル基、メチルチエニル基、フェニルチエニル基またはフェニルピチエニル基であることが好ましい。さらには $Ar_1$ および $Ar_2$ の少なくとも一方がフェニル基、ビフェニル基またはターフェニル基であり、 $L_2$ は単結合であることが好ましい。







【0048】式(A-1)、式(A-2)で表される化合物を以下に例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。ここでは式と基の組合せで示しており、 $R_{11}, \dots, R_{17}$ 等でまとめて示すときは置換基のみを示すものとし、すべて水素原子のときは-Hで示している。また略号は適時示すものとする(なお、Tolylはトリル基である)。

【0049】

【化10】









【0050】

15												16
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
1-1	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-2	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
1-3	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-4	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
1-5	-Ph	-H	-Ph	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H	-H
1-6	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H
1-7	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H
1-8	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OPh	-H	-H	-OPh	-H	-H	-H
1-9	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OMe	-H	-H	-OMe	-H	-H	-H
1-10	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
1-11	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-H
1-12	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-H
1-13	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-H
1-14	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-H
1-15	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-H
1-16	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
1-17	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H





[0051]

[化12]

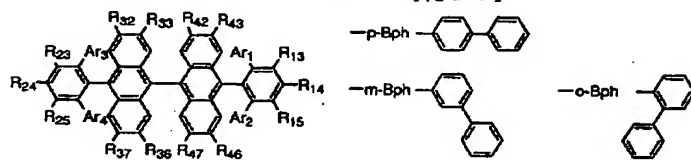
17												18
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
1-18	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-19	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
1-20	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-21	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
1-22	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H	-H
1-23	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H
1-24	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H
1-25	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-OPh	-H	-H	-OPh	-H	-H	-H
1-26	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-OMe	-H	-H	-OMe	-H	-H	-H
1-27	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H		-H		-H	-H	-H	-H
1-28	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-p-Bph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-H
1-29	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-m-Bph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-H
1-30	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-o-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-H
1-31	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-H
1-32	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-H
1-33	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H		-H	-H		-H	-H	-H
1-34	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H		-H	-H		-H	-H	-H

[0052]

[化13]

19													20	
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>		
1-35	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
1-36	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H		
1-37	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H		
1-38	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H		
1-39	-m-Bph	-H	-m-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
1-40	-m-Bph	-H	-m-Bph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H		
1-41	-m-Bph	-H	-m-Bph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H		
1-42	-m-Bph	-H	-m-Bph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H		
1-43	-o-Bph	-H	-o-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
1-44	-o-Bph	-H	-o-Bph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H		
1-45	-o-Bph	-H	-o-Bph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H		
1-46	-o-Bph	-H	-o-Bph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H		
1-47	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-H		
1-48	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-H		
1-49	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-H		
1-50	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H		
1-51	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H		

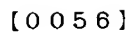
[0053]



[0054]

[化15]

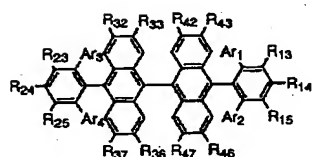
【0055】



【化 17】

23													24	
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>		
1-69	-p-Tp	-p-Tp	-p-Tp	-p-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
1-70	-p-Tp	-H	-p-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
1-71	-p-Tp	-H	-p-Tp	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H		
1-72	-p-Tp	-H	-p-Tp	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Ph	-H		
1-73	-p-Tp	-H	-p-Tp	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H		
1-74	-p-Tp	-CH <sub>3</sub>	-p-Tp	-CH <sub>3</sub>	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
1-75	-m-Tp	-m-Tp	-m-Tp	-p-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
1-76	-m-Tp	-H	-m-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
1-77	-o-Tp	-o-Tp	-o-Tp	-o-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
1-78	-o-Tp	-H	-o-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
1-79	-p,o-Tp	-H	-p,o-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
1-80	-o,p-Tp	-H	-o,p-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
1-81	-p,m-Tp	-H	-p,m-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
1-82	-m,p-Tp	-H	-m,p-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
1-83	-m,o-Tp	-H	-m,o-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
1-84	-o,m-Tp	-H	-o,m-Tp	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		

[0057]  
[化18]



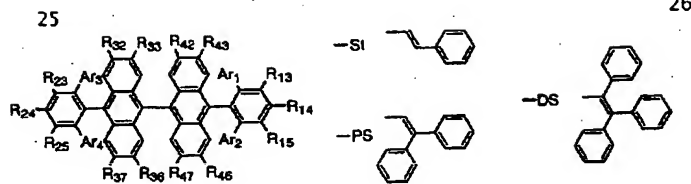
\* [0058]  
20 [化19]

23													24	
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>		
1-85	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>32</sub> =Ph	R <sub>43</sub> =Ph		
1-86	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>32</sub> =Ph R <sub>37</sub> =Ph	R <sub>43</sub> =Ph R <sub>46</sub> =Ph		
1-87	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>32</sub> =Ph R <sub>36</sub> =Ph	R <sub>43</sub> =Ph R <sub>47</sub> =Ph		
1-88	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>32</sub> =Ph	R <sub>43</sub> =Ph		
1-89	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>32</sub> =Ph R <sub>37</sub> =Ph	R <sub>43</sub> =Ph R <sub>46</sub> =Ph		
1-90	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>32</sub> =Ph R <sub>36</sub> =Ph	R <sub>43</sub> =Ph R <sub>47</sub> =Ph		
1-91	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>32</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me		
1-92	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>32</sub> =Me R <sub>37</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me R <sub>46</sub> =Me		
1-93	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>32</sub> =Me R <sub>36</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me R <sub>47</sub> =Me		
1-94	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>32</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me		
1-95	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>32</sub> =Me R <sub>37</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me R <sub>46</sub> =Me		
1-96	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>32</sub> =Me R <sub>36</sub> =Me	R <sub>43</sub> =Me R <sub>47</sub> =Me		

[0059]

50 [化20]

(14)



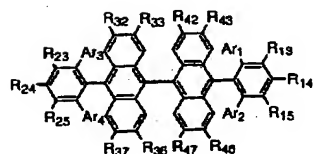
[0060]

\* \* [化21]

No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
1-97	-Si	-H	-Si	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-98	-Si	-H	-Si	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
1-99	-Si	-H	-Si	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-Ph	-H	-H
1-100	-Si	-H	-Si	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H
1-101	-Si	-Si	-Si	-Si	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-102	-Si	-Si	-Si	-Si	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
1-103	-Si	-Si	-Si	-Si	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-104	-Si	-Si	-Si	-Si	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
1-105	-Si	-H	-Si	-H	-H	-Si	-H	-H	-H	-Si	-H	-H
1-106	-Si	-Si	-Si	-Si	-H	-Si	-H	-H	-Si	-H	-H	-H
1-107	-PS	-H	-PS	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-108	-PS	-PS	-PS	-PS	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-109	-PS	-H	-PS	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-110	-DS	-H	-DS	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-111	-DS	-DS	-DS	-DS	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-112	-DS	-H	-DS	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H

[0061]

[化22]

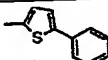
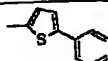
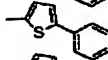
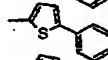
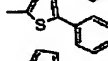
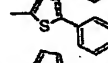
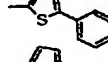
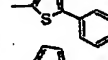
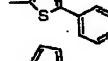
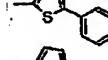
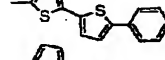
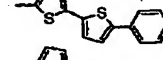
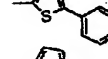
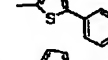
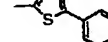
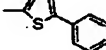
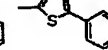
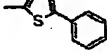


30 [0062]

[化23]



(15)

				28									
No.	Ar <sub>1</sub>	27 Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>	
1-113		-H		-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	
1-114		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	
1-115		-CH <sub>3</sub>		-CH <sub>3</sub>	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	
1-116		-p-Bph		-p-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	
1-117		-p-Bph		-p-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	
1-118		-H		-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	
1-119		-H		-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	
1-120					-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	

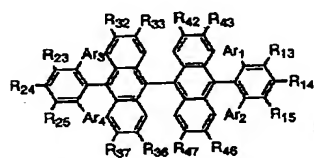
[0063]

[化24]

\* [0064]

[化25]

20

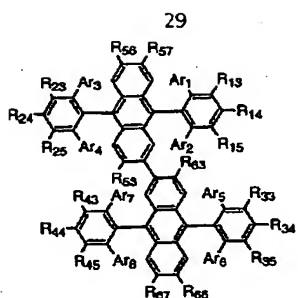


\*

No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
1-121		-H		-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-122		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-123		-CH <sub>3</sub>		-CH <sub>3</sub>	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-124		-p-Bph		-p-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-125		-p-Bph		-p-Bph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-126		-H		-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
1-127		-H		-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
1-128					-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H

[0065]

[化26]



\*【0066】

【化27】

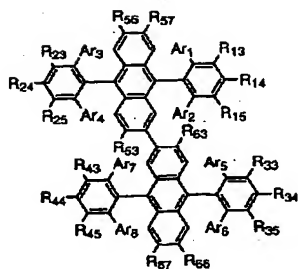
\*

上記式中のAr<sub>1</sub>~Ar<sub>8</sub> (次頁に続く)

No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	Ar <sub>6</sub>	Ar <sub>7</sub>	Ar <sub>8</sub>
2-1	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H
2-2	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
2-3	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H
2-4	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
2-5	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H
2-6	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H
2-7	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H
2-8	-Ph	-CH <sub>3</sub>	-Ph	-CH <sub>3</sub>	-Ph	-CH <sub>3</sub>	-Ph	-CH <sub>3</sub>
2-9	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H
2-10	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H
2-11	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H
2-12	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph
2-13	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H
2-14	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph	-p-Bph
2-15	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H
2-16	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H	-p-Bph	-H
2-17	-m-Bph	-H	-m-Bph	-H	-m-Bph	-H	-m-Bph	-H
2-18	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph	-m-Bph
2-19	-o-Bph	-H	-o-Bph	-H	-o-Bph	-H	-o-Bph	-H
2-20	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph	-o-Bph

【0067】

【化28】



【0068】

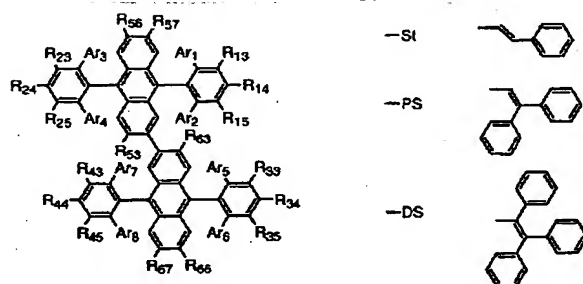
【化29】

上記式中のR<sub>13</sub>~R<sub>15</sub>等(前頁の続き)

No.	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>33</sub>	R <sub>34</sub>	R <sub>35</sub>	R <sub>43</sub>	R <sub>44</sub>	R <sub>45</sub>	R <sub>55-57</sub>	R <sub>65-67</sub>
2-1	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-2	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-3	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
2-4	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
2-5	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
2-6	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
2-7	-H	-CH <sub>3</sub>	-H	-H	-CH <sub>3</sub>	-H	-H	-CH <sub>3</sub>	-H	-H	-CH <sub>3</sub>	-H	-H	-H
2-8	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-9	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>55</sub> =Ph	R <sub>65</sub> =Ph	
2-10	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>55</sub> =Ph R <sub>57</sub> =Ph	R <sub>65</sub> =Ph R <sub>67</sub> =Ph	
2-11	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-12	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-13	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
2-14	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
2-15	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
2-16	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
2-17	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-18	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-19	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-20	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H

[0069]

\* \* [化30]



[0070]

\* \* [化31]

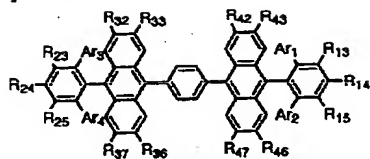
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	Ar <sub>5</sub>	Ar <sub>6</sub>	Ar <sub>7</sub>	Ar <sub>8</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>33</sub>	R <sub>34</sub>	R <sub>35</sub>	R <sub>43</sub>	R <sub>44</sub>	R <sub>45</sub>	R <sub>55-57</sub>	R <sub>65-67</sub>
2-21	-St	-H	-St	-H	-St	-H	-St	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-22	-St	-St	-St	-St	-St	-St	-St	-St	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-23	-St	-H	-St	-H	-St	-H	-St	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
2-24	-St	-St	-St	-St	-St	-St	-St	-St	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
2-25	-PS	-H	-PS	-H	-PS	-H	-PS	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-26	-PS	-PS	-PS	-H	-PS	-PS	-PS	-PS	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-27	-DS	-H	-DS	-H	-DS	-H	-DS	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-28	-DS	-DS	-DS	-DS	-DS	-DS	-DS	-DS	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
2-29	-St	-St	-St	-St	-St	-St	-St	-St	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>55</sub> =Ph	R <sub>65</sub> =Ph
2-30	-St	-H	-St	-H	-St	-H	-St	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	R <sub>55</sub> =Ph R <sub>57</sub> =Ph	R <sub>65</sub> =Ph R <sub>67</sub> =Ph

【0071】

【化32】

\*【0072】

【化33】

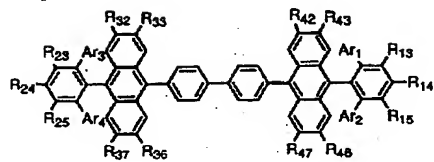


\*

No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
3-1	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
3-2	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
3-3	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
3-4	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
3-5	-Ph	-H	-Ph	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H	-H
3-6	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H
3-7	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H
3-8	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OPh	-H	-H	-OPh	-H	-H	-H
3-9	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OMe	-H	-H	-OMe	-H	-H	-H
3-10	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H		-H	-H	-H	-H
3-11	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-H
3-12	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-H
3-13	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-H
3-14	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-H
3-15	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-H
3-16	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
3-17	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H







【0073】

【化34】



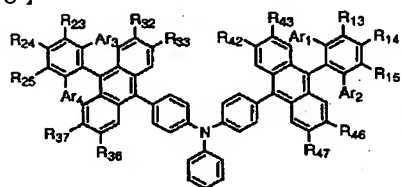
【0074】

【化35】

35													36	
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>		
4-1	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H		
4-2	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H		
4-3	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H		
4-4	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H		
4-5	-Ph	-H	-Ph	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H	-H		
4-6	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H		
4-7	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H		
4-8	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OPh	-H	-H	-OPh	-H	-H	-H		
4-9	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OMe	-H	-H	-OMe	-H	-H	-H		
4-10	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H		
4-11	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-H		
4-12	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-H		
4-13	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-H		
4-14	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-H		
4-15	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-H		
4-16	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H		
4-17	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H		

[0075]

[化36]









[0076]

[化37]

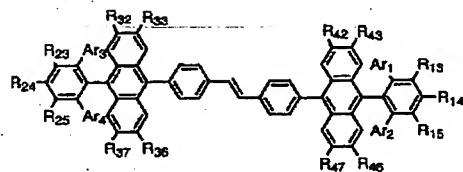
37

38

No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
5-1	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
5-2	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
5-3	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
5-4	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
5-5	-Ph	-H	-Ph	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H	-H
5-6	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H
5-7	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H
5-8	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OPh	-H	-H	-OPh	-H	-H	-H
5-9	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OMe	-H	-H	-OMe	-H	-H	-H
5-10	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
5-11	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-H
5-12	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-H
5-13	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-H
5-14	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-H
5-15	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-H
5-16	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
5-17	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H













[0077]

[化38]



[0078]

[化39]

39													40												
No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>	No.	Ar <sub>1</sub>	Ar <sub>2</sub>	Ar <sub>3</sub>	Ar <sub>4</sub>	R <sub>13</sub>	R <sub>14</sub>	R <sub>15</sub>	R <sub>23</sub>	R <sub>24</sub>	R <sub>25</sub>	R <sub>32-37</sub>	R <sub>42-47</sub>
6-1	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	6-1	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H	-H
6-2	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H	6-2	-Ph	-H	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
6-3	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	6-3	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H
6-4	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Ph	-H	6-4	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H
6-5	-Ph	-H	-Ph	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H	-H	6-5	-Ph	-H	-Ph	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H	-H
6-6	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H	6-6	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	-H
6-7	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H	6-7	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-H	-Me	-H	-H	-Me	-H	-H
6-8	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OPh	-H	-H	-OPh	-H	-H	-H	6-8	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OPh	-H	-H	-OPh	-H	-H	-H
6-9	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OMe	-H	-H	-OMe	-H	-H	-H	6-9	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-OMe	-H	-H	-OMe	-H	-H	-H
6-10	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H	6-10	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
6-11	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-H	6-11	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-p-Bph	-H	-H	-H
6-12	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-H	6-12	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-m-Bph	-H	-H	-H
6-13	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-H	6-13	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-o-Bph	-H	-H	-H
6-14	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-H	6-14	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-NPh <sub>2</sub>	-H	-H	-H
6-15	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-H	6-15	-Ph	-H	-Ph	-H	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-N(Tolyl) <sub>2</sub>	-H	-H	-H
6-16	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H	6-16	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H
6-17	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H	6-17	-Ph	-H	-Ph	-H	-H		-H	-H		-H	-H	-H

【0079】本発明のフェニルアントラセン誘導体の合成法については、特開平8-12600号公報等を参照することができる。

【0080】これらの化合物は1種のみを用いても2種以上を併用してもよい。

【0081】フェニルアントラセン誘導体を青色発光化合物として用い、青色発光層とする場合の膜厚としては1~500nmが好ましく、より好ましくは10~200nmである。

【0082】このような発光層には青色発光を保持することが可能な形でドーバントをドーブしてもよい。このようなドーバントとしてはWO98/08360号や特開平8-239655号に開示のスチリル系アミン化合物等が挙げられる。スチリル系アミン化合物については後述する。ドーバントの使用量は発光層中において0.1~20質量%であることが好ましい。ドーバントの使用により発光効率や素子の安定性が向上する。

【0083】また、青色発光層は発光層に隣接して設けられる電子輸送層、ホール輸送層に用いられる電子注入輸送性化合物あるいはホール注入輸送性化合物をホスト材料として含有するものであってもよい。具体的には電子輸送層に用いたフェニルアントラセン誘導体をホスト材料として用いることなどが挙げられる。フェニルアントラセン誘導体は青色発光特性を有するものであるの

で、それ自体で青色発光させることが可能であるが、ホスト材料が青色発光特性を有しないものであるときは、ドーバントを使用することにより発光特性をかせ、青色発光するようにしてもよい。このようなドーバントとしては前述のスチリル系アミン化合物などが挙げられる。

【0084】こうした構成では、ホスト材料となる化合物を含有する電子輸送層あるいはホール輸送層と発光層との膜厚比を、発光層厚/電子輸送層あるいはホール輸送層厚が1/100~100/1となるようにすることが好ましい。

【0085】また、青色発光層は電子注入輸送性化合物とホール注入輸送性化合物との混合層であってもよく、このような態様は好ましい。なかでも、電子注入輸送性化合物、ホール注入輸送性化合物のいずれか一方の化合物は、発光層に隣接して設けられる電子輸送層、ホール輸送層に用いられた化合物と同じものが好ましい。特に好ましくは、発光層に隣接して電子輸送層とホール輸送層とを設け、これらの層中の電子注入輸送性化合物とホール注入輸送性化合物とを用い、これらの化合物の混合化合物とすることである。

【0086】具体的には、電子輸送層中のフェニルアントラセン誘導体を電子注入輸送性化合物として用い、ホール輸送層中の芳香族三級アミンをホール注入輸送性化合物として用いることが好ましい。フェニルアントラセ

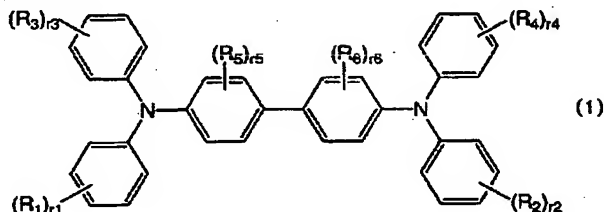
30

40

50

ン誘導体として前述の式(A)の化合物が好ましい。芳香族三級アミンとしては、式(1)で表されるテトラアリールベンジジン誘導体が好ましい。

\* [0087]  
[化40]



【0088】式(1)について説明すると、 $R_1 \sim R_4$ は、それぞれアリール基、アルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基またはハロゲン基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。 $r_1 \sim r_4$ は、それぞれ0~5の整数であり、 $r_1 \sim r_4$ がそれぞれ2以上の整数であるとき、隣接する $R_1$ 同士、 $R_2$ 同士、 $R_3$ 同士、 $R_4$ 同士は、それぞれ互いに結合して環を形成してもよい。 $R_5$ および $R_6$ は、それぞれアルキル基、アルコキシ基、アミノ基またはハロゲン基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。 $r_5$ および $r_6$ は、それぞれ0~4の整数である。

【0089】 $R_1 \sim R_4$ で表されるアリール基としては、単環もしくは多環のものであってもよく、縮合環や環集合も含まれる。総炭素数は6~20のものが好ましく、置換基を有していてもよい。この場合の置換基としては、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、アミノ基、ハロゲン原子等が挙げられる。具体的には、フェニル基、(o-, m-, p-)トリル基、ビレニル基、ペリレニル基、コロネニル基、ナフチル基、アントリル基、ピフェニル基、フェニルアントリル基、トリルアントリル基等が挙げられ、特にフェニル基が好ましく、アリール基、特にフェニル基の結合位置は3位(Nの結合位置に対してメタ位)または4位(Nの結合位置に対してパラ位)であることが好ましい。

【0090】 $R_1 \sim R_4$ で表されるアルキル基としては、直鎖状でも分岐を有するものであってもよく、炭素数1~10のものが好ましく、置換基を有していてもよい。この場合の置換基としてはアリール基と同様のものが挙げられる。具体的には、メチル基、エチル基、(n-, i-)プロピル基、(n-, i-, s-, t-)ブチル基等が挙げられる。

【0091】 $R_1 \sim R_4$ で表されるアルコキシ基としては、アルキル部分の炭素数1~6のものが好ましく、具体的にはメトキシ基、エトキシ基、t-ブトキシ基等が挙げられる。アルコキシ基はさらに置換されていてもよい。

【0092】 $R_1 \sim R_4$ で表されるアリールオキシ基としては、フェノキシ基、4-メチルフェノキシ基、4-(t-ブチル)フェノキシ基等が挙げられる。

【0093】 $R_1 \sim R_4$ で表されるハロゲン基としては、塩素原子、臭素原子等が挙げられる。

【0094】式(1)のなかでも、好ましい態様としては、 $r_1 \sim r_4$ のいずれかが2以上の整数であり、 $R_1$ 同士、 $R_2$ 同士、 $R_3$ 同士および $R_4$ 同士のなかのいずれかが互いに結合して環(例えばベンゼン環)を形成する場合が挙げられる。

【0095】また、別の好ましい態様としては $R_1 \sim R_4$ のうちの少なくとも1個はアリール基である場合である。すなわち、 $r_1 \sim r_4$ は同時に0になることはない。従って、 $r_1 + r_2 + r_3 + r_4$ は1以上の整数であり、少なくとも1つのアリール基が存在する条件を満たす数である。

【0096】 $R_1 \sim R_4$ のうちの少なくとも1個はアリール基であるとき、特に $R_1 \sim R_4$ として1分子中にアリール基が2~4個存在することが好ましく、 $r_1 \sim r_4$ の中の2~4個が1以上の整数であることが好ましい。特に、アリール基は分子中に総計で2~4個存在し、好ましくは $r_1 \sim r_4$ の中の2~4個が1であり、さらに好ましくは $r_1 \sim r_4$ が1であり、含まれる $R_1 \sim R_4$ のすべてがアリール基であることも好ましい。すなわち、分子中の $R_1 \sim R_4$ が置換していてもよい4個のベンゼン環には総計で2~4個のアリール基が存在し、2~4個のアリール基は4個のベンゼン環の中で同一のものに結合していても、異なるものに結合していてもよいが、特に2~4個のアリール基がそれぞれ異なるベンゼン環に結合していることが好ましい。そして、さらに少なくとも2個のアリール基がNの結合位置に対してパラ位またはメタ位に結合していることがより好ましい。また、この際アリール基としては少なくとも1個がフェニル基であることが好ましく、すなわちアリール基とベンゼン環が一緒になってN原子に対し4-または3-ピフェニル基を形成することが好ましい。特に2~4個が4-または3-ピフェニル基であることが好ましい。4-または3-ピフェニル基は一方のみでも両者が混在していてもよい。また、フェニル基以外のアリール基としては、特に(1-, 2-)ナフチル基、(1-, 2-, 9-)アントリル基、ビレニル基、ペリレニル基、コロネニル基などが好ましく、フェニル基以外のアリール基もNの結合位置に対しパラ位またはメタ位に結合すること



が好ましい。これらのアリール基もフェニル基と混在していてもよい。

【0097】式(1)において、 $R_1$ 、 $R_2$ で表されるアルキル基、アルコキシ基、ハロゲン原子としては、 $R_1 \sim R_2$ のところで挙げたものと同様のものが挙げられる。

【0098】 $R_1$ 、 $R_2$ で表されるアミノ基としては、無置換でも置換基を有するものであってもよいが、置換基を有するものが好ましく、具体的にはジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ジビフェニルアミノ基、N-フェニル-N-トリルアミノ基、N-フェニル-N-ナフチルアミノ基、N-フェニル-N-ビフェニルアミノ基、N-フェニル-N-アントリルアミノ基、N-フェニル-N-\*

\*ビレニルアミノ基、ジナフチルアミノ基、ジアントリルアミノ基、ジビレニルアミノ基等が挙げられる。

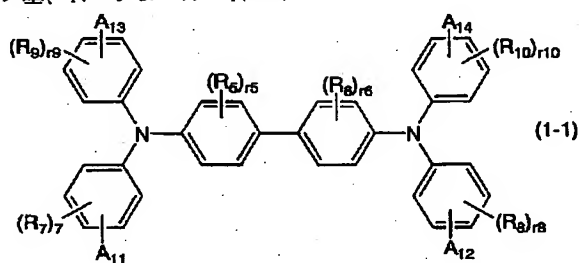
【0099】 $r_1$ 、 $r_2$ は、ともに0であることが好ましく、2つのアリールアミノ基を連結するビフェニレン基は無置換のものが好ましい。

【0100】なお、 $r_1 \sim r_2$ が2以上の整数のとき、各 $R_1 \sim R_2$ 同士は各々同一でも異なるものであってもよい。また、 $r_1$ 、 $r_2$ が2以上の整数のとき、 $R_1$ 、 $R_2$ 同士は同一でも異なるものであってもよい。

【0101】これらの化合物の中でも、下記式(1-1)で表される化合物が好ましい。

【0102】

【化41】



【0103】式(1-1)について説明すると、 $A_{11} \sim A_{14}$ は、それぞれNの結合位置に対してパラ位(4位)またはメタ位(3位)に結合するフェニル基または水素原子を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。ただし、 $A_{11} \sim A_{14}$ の2個以上はフェニル基であることが好ましい。これらのフェニル基はさらに置換基を有していてもよく、この場合の置換基としては $R_1 \sim R_{10}$ で表されるアリール基のところで挙げた置換基と同様のものを挙げることができる。

【0104】 $R_1 \sim R_{10}$ は、それぞれアルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基またはハロゲン基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。これらの具体例としては式(1)の $R_1 \sim R_2$ のところで挙げたものと同様のものを挙げることができる。

【0105】 $r_1 \sim r_{10}$ は、それぞれ0~4の整数であり、 $r_1 \sim r_{10}$ は0であることが好ましい。

【0106】なお、 $r_1 \sim r_{10}$ が各々2以上の整数であるとき、各 $R_1 \sim R_{10}$ 同士は同一でも異なるものであってもよい。

【0107】また、式(1-1)において、 $R_1 \sim R_{10}$ 、 $r_1$ および $r_{10}$ は式(1)のものと同義であり、 $r_1 = r_{10} = 0$ であることが好ましい。

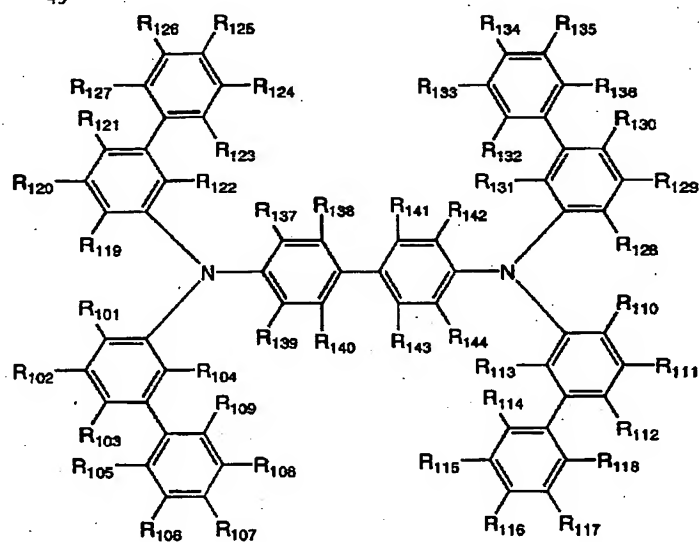
【0108】式(1)で表される化合物の具体例を以下に示すが、本発明はこれに限定されるものではない。具体例は式(I)、(II)の表示に従って示しており、 $R_1 \sim R_{10}$ 等においてすべてHのときはHで示し、置換基が存在するときは置換基のみを示している。このほか、実施例で使用のN,N'-ジ(1-ナフチル)-N,N'-ジフェニルベンジジンが例示できる。

【0109】

【化42】

45

46



(I)

[0110]

[化43]

[0111]

化43

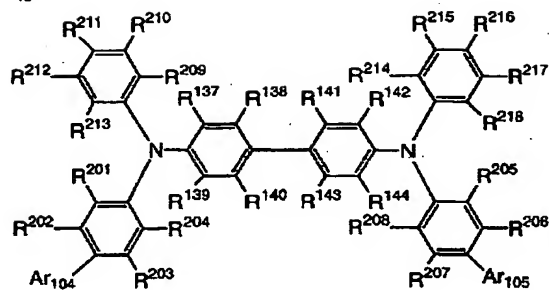
化合物 No.	$R_{101} \sim R_{104}$	$R_{105} \sim R_{109}$	$R_{110} \sim R_{113}$	$R_{114} \sim R_{118}$	$R_{119} \sim R_{122}$	$R_{123} \sim R_{127}$	$R_{128} \sim R_{131}$	$R_{132} \sim R_{136}$	$R_{137} \sim R_{144}$
I-1	H	H	H	H	H	H	H	H	H
I-2	H	$R_{106} = CH_3$	H	$R_{117} = CH_3$	H	$R_{126} = CH_3$	H	$R_{136} = CH_3$	H
I-3	H	$R_{107} = CH_3$	H	$R_{118} = CH_3$	H	$R_{123} = CH_3$	H	$R_{134} = CH_3$	H
I-4	H	$R_{107} = Ph$	H	$R_{116} = Ph$	H	$R_{125} = Ph$	H	$R_{134} = Ph$	H
I-5	H	$R_{107} = OPh$	H	$R_{116} = OPh$	H	$R_{125} = OPh$	H	$R_{134} = OPh$	H
I-6	H	$R_{107} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{116} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{126} = N(C_2H_5)_2$	H	$R_{134} = N(C_2H_5)_2$	H
I-7	$R_{102} = Ph$	H	$R_{111} = Ph$	H	$R_{120} = Ph$	H	$R_{126} = Ph$	H	H
I-8	$R_{102} = OPh$	H	$R_{111} = OPh$	H	$R_{120} = OPh$	H	$R_{126} = OPh$	H	H
I-9	H	H	H	H	H	H	H	H	$R_{137} = R_{142} = CH_3$
I-10	H	H	H	H	H	H	H	H	$R_{140} = R_{143} = CH_3$
I-11	$R_{102} = Ph$	$R_{107} = Ph$	$R_{111} = Ph$	$R_{116} = Ph$	$R_{120} = Ph$	$R_{126} = Ph$	$R_{126} = Ph$	$R_{134} = Ph$	H
I-12	H	$R_{106} = CH_3$	H	$R_{116} = CH_3$	H	$R_{126} = CH_3$	H	$R_{134} = CH_3$	H
I-13	H	$R_{106} = Ph$	H	$R_{117} = Ph$	H	$R_{126} = Ph$	H	$R_{135} = Ph$	H

[化44]

(25)

特開2001-52870

48



(II)

[0112]

\* \* [化45]

化合物 No.	Ar <sub>104</sub>	Ar <sub>105</sub>	R <sup>201</sup> ~R <sup>204</sup>	R <sup>205</sup> ~R <sup>208</sup>	R <sup>209</sup> ~R <sup>213</sup>	R <sup>214</sup> ~R <sup>218</sup>	R <sup>137</sup> ~R <sup>144</sup>
105-1			H	H	H	H	H
105-2			H	H	H	H	H
105-3			H	H	H	H	H
105-4			H	H	H	H	H
105-5			H	H	H	H	H
105-6			H	H	H	H	H
105-7			H	H	H	H	H
105-8			H	H	H	H	H

[0113]

[化46]

化合物 No.	Ar <sub>104</sub>	Ar <sub>105</sub>	R <sup>201</sup> ~R <sup>204</sup>	R <sup>205</sup> ~R <sup>208</sup>	R <sup>209</sup> ~R <sup>213</sup>	R <sup>214</sup> ~R <sup>218</sup>	R <sup>137</sup> ~R <sup>144</sup>
105-9			H	H	H	H	H
105-10			H	H	H	H	H
105-11			H	H	H	H	H
105-12			H	H	H	H	H
105-13			H	H	H	H	H

【0114】

【化47】

化合物 No.	Ar104	Ar105	R <sup>201</sup> ~R <sup>204</sup>	R <sup>205</sup> ~R <sup>208</sup>	R <sup>209</sup> ~R <sup>213</sup>	R <sup>214</sup> ~R <sup>218</sup>	R <sup>219</sup> ~R <sup>244</sup>
105-14			H	H	H	H	H
105-15			H	H	H	H	R <sup>137</sup> =R <sup>142</sup> =CH <sub>3</sub>
105-16			H	H	H	H	R <sup>137</sup> =R <sup>142</sup> =CH <sub>3</sub>
105-17			H	H	H	R <sup>216</sup> =Ph	H
105-18			H	H	H	R <sup>217</sup> =Ph	H
105-19			H	H	H	R <sup>218</sup> =Ph	H

【0115】式(1)で表されるテトラアリアルベンジジン誘導体は1種のみ用いても2種以上併用してもよい。

【0116】混合層における電子注入輸送性化合物とホール注入輸送性化合物との混合比(体積比)は電子注入輸送性化合物/ホール注入輸送性化合物が10/90~90/10であることが好ましく、さらに好ましくは20/80~80/20である。

【0117】このような混合層において、電子輸送性化合物に前述のフェニルアントラセン誘導体を用いる場合は、これ自身を青色発光化合物とすることができる。このようにフェニルアントラセン誘導体を青色発光化合物とし、テトラアリアルベンジジン誘導体と混合して青色発光層とする場合、フェニルアントラセン誘導体/テト

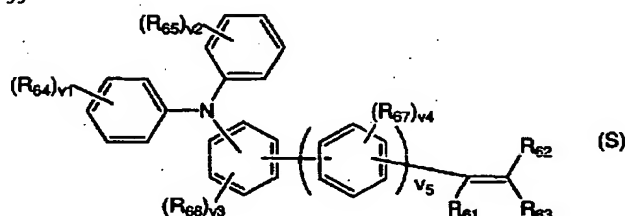
ラアリアルベンジジン誘導体(体積比)は95/5~30/70が好ましく、90/10~40/60がより好ましい。

【0118】また、上述のような混合層において、さらにドーバントをドーブしてもよく、ドーバントのドーブは発光効率の向上および素子の安定性の点で好ましい。ドーバントの使用量は混合層中において0.1~20質量%であることが好ましい。

【0119】このようなドーバントとしては前述のスチリル系アミン化合物が好ましく用いられる。特に式(S)で表される化合物が好ましい。

【0120】

【化48】



【0121】式(S)について説明すると、式(S)中、 $R_{61}$ は水素またはアリール基を表す。 $R_{61}$ で表されるアリール基としては置換基を有するものであってもよく、総炭素数6~30のものが好ましく、例えばフェニル基等が挙げられる。

【0122】 $R_{62}$ 、 $R_{63}$ は各々水素、アリール基またはアルケニル基を表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。

【0123】 $R_{62}$ および $R_{63}$ で表されるアリール基としては置換基を有するものであってもよく、総炭素数6~70のものが好ましい。具体的にはフェニル基、ナフチル基、アントリル基等が挙げられ、置換基としてはアリールアミノ基(例えばジフェニルアミノ基)、アリールアミノアリール基等が好ましい。また、このような置換基中にはスチリル基(スチリル基はさらにフェニル基、ジフェニルアミノ基、ナフチル(フェニル)アミノ基、ジフェニルアミノフェニル基等の置換基を有していてもよい。)が含まれることも好ましく、このような場合式(S)で示される化合物から誘導される一価の基同士が、それ自体でまたは連結基を介して結合したような構造であることも好ましい。

【0124】 $R_{61}$ 、 $R_{62}$ で表されるアルケニル基としては置換基を有するものであってもよく、総炭素数2~50のものが好ましく、ビニル基等が挙げられ、ビニル基とともにスチリル基を形成していることが好ましく、スチリル基はアリールアミノアリール基(例えばジフェニルアミノフェニル基)やアリールアミノ基(例えばジフェニルアミノ基)等の置換基を有していてもよく、このような場合、式(S)で示される化合物から誘導される一価の基同士が、それ自体でまたは連結基を介して結

合したような構造であることも好ましい。

【0125】 $R_{64}$ 、 $R_{65}$ はアリールアミノ基またはアリールアミノアリール基を表し、これらにはスチリル基(スチリル基はさらにフェニル基等の置換基を有していてもよい。)を含んでいてもよく、このような場合、上記の同じく、式(S)で示される化合物から誘導される一価の基同士がそれ自体でまたは連結基を介して結合したような構造であることも好ましい。

【0126】 $v_1$ 、 $v_2$ は0~5の整数を表し、 $v_1$ 、 $v_2$ が2以上のとき、 $R_{64}$ 同士、 $R_{65}$ 同士が互いに結合してベンゼン環等の縮合環を形成してもよい。

【0127】 $R_{66}$ 、 $R_{67}$ は各々アルキル基、アリール基を表す。 $R_{66}$ 、 $R_{67}$ で表されるアルキル基としては、置換基を有していてもよく、直鎖状でも分岐を有していてもよく、総炭素数1~6のものが好ましく、具体的にはメチル基、エチル基等が挙げられる。 $R_{66}$ 、 $R_{67}$ で表されるアリール基としては、置換基を有していてもよく、単環でも多環であってもよく総炭素数6~20のものが好ましく、具体的にはフェニル基等が挙げられる。

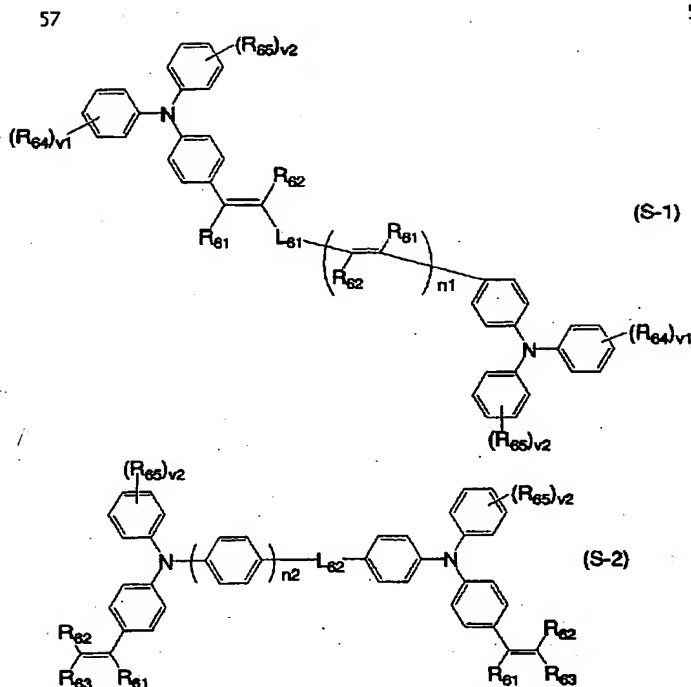
【0128】 $v_3$ 、 $v_4$ は0~4の整数を表す。

【0129】 $v_5$ は0または1を表す。式(S)のなかでも、 $v_5$ が0であって、 $R_{64}$ 、 $R_{65}$ が結合していてもよいジフェニルアミノ基と、 $R_{61}$ 、 $R_{62}$ 、 $R_{63}$ が結合したビニル基とがフェニレン基に対してパラ位となるように結合した構造が好ましい。

【0130】特に、下記式(S-1)、(S-2)で表される化合物が好ましい。

【0131】

【化49】



【0132】式(S-1)中、 $R_{61}$ 、 $R_{62}$ 、 $R_{64}$ 、 $R_{65}$ 、 $v_1$ 、 $v_2$ は、式(S)中のものと同義のものであり、 $n_1$ は0または1を表し、 $L_{61}$ は結合手またはアリーレン基を表す。アリーレン基の好ましい具体例としては、フェニレン基、ピフェニレン基、ナフチレン基、アントリレン基等が挙げられ、これらの組合せも好ましく、これらの基は、さらに置換基を有していてもよい。

【0133】式(S-2)中、 $R_{61}$ ～ $R_{65}$ 、 $R_{65}$ 、 $v_2$ は、式(S)中のものと同義のものであり、 $n_2$ は0または1を表し、 $L_{62}$ は式(S-1)中の $L_{61}$ と同義である。

【0134】式(S)のスティリル系アミン化合物の具体例を以下に示す。

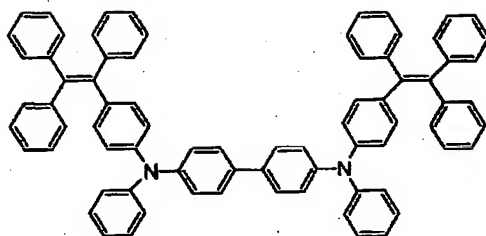
【0135】

【化50】

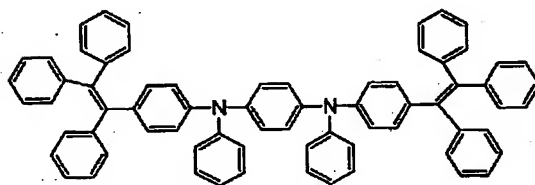


59

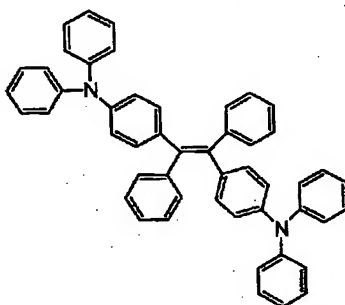
S-1



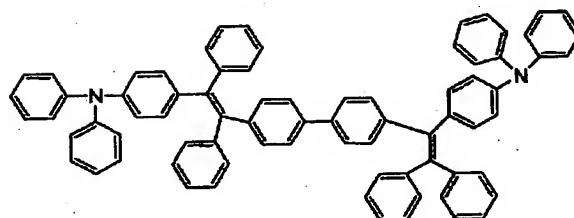
S-2



S-3

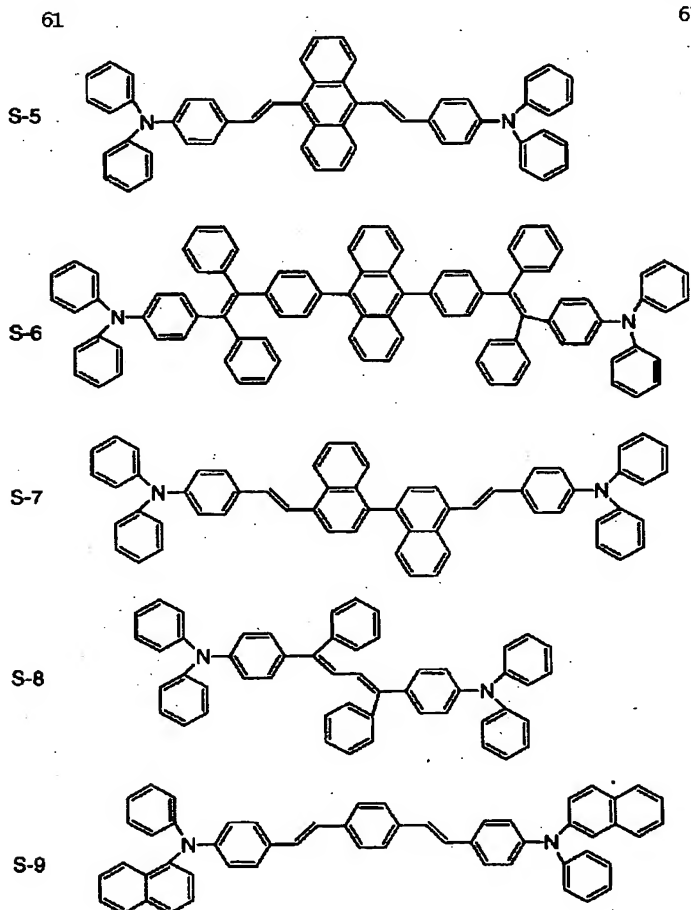


S-4



[0136]

[化51]



【0137】これらの化合物は1種のみ用いても2種以上併用してもよい。

【0138】上記のような混合層において、電荷移動度と電荷密度の積がほぼ等しくなるように電子注入輸送性化合物およびホール注入輸送性化合物を選ぶことが好ましい。さらに好ましくは前記の条件を満たしかつ電荷移動度もほぼ等しいことが好ましい。この場合、電荷移動度は、タイムオブフライト法等により求めたものであり、 $1 \times 10^{-3} \sim 1 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$ の範囲にあることが好ましい。このように電荷移動度が近くなるように化合物を選ぶことによって、i) キャリアの再結合確率を向上させることが発光効率を向上させること、ii) 発光層からキャリアの突抜けが少なくなり、キャリア輸送層のダメージが小さくなり、素子の発光寿命を長寿命化できる利点がある。また、ホール注入輸送性化合物と電子注入輸送性化合物を混合することで、各電子とホールの移動度が低下し、再結合確率が向上する等の利点もある。

【0139】混合層において、電子注入輸送性化合物とホール注入輸送性化合物とは均一に混合していてもよく、膜厚方向に濃度分布をもち、ホール輸送層側にてホール注入輸送性化合物の濃度が高く、電子輸送層側に向

30 かってその濃度が漸減し、一方電子輸送層側にて電子注入輸送性化合物の濃度が高く、ホール輸送層側に向かってその濃度が漸減する傾斜膜としてもよい。傾斜膜において、電子注入輸送性化合物は電子輸送層側の混合層の1/2領域に混合層全体に存在する電子注入輸送性化合物の95～50質量%程度存在することが好ましく、ホール注入輸送性化合物についても同様の関係が成立することが好ましい。

【0140】以上のような混合層からなる青色発光層は、電子とホールとが発光層全体に分布しており、再結合ポイントおよび発光ポイントが発光層内全体に拡がっており、層間界面近傍のみならず混合層全体で発光している。このことは実測の発光スペクトルと、発光領域を仮定して各光学界面での反射光と直接光の光学干渉シミュレーションを行った発光スペクトルをフィッティングすることで容易に確認することができる。このように層全体で発光することが可能であるため、積層した数種の波長の異なる発光を一つの素子から安定に取り出すことができ、かつ素子の発光寿命を延ばす等の利点が得られる。

【0141】本発明における青色発光層の発光極大波長は400～500nmである。

【0142】上述のような混合層の厚さは1~500nm、さらには20~200nmであることが好ましい。

【0143】＜その他の発光色＞本発明の有機EL素子は、青色発光層のほかに、これとは発光波長の異なる少なくとも1層の発光層を有する多色発光に対応したものであることが好ましい。このような発光層は、赤（発光極大波長600~700nm）、緑（発光極大波長500~560nm）などの発光光を発するものであってよい。

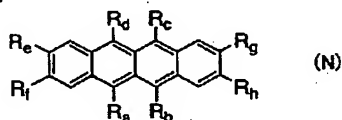
【0144】また、これらの発光層において、青色発光層と同じホスト材料を用いた混合層とし、ドーパントを加えることによって青色とは異なる色の発光光を発する発光層とすることが好ましい。これにより再結合領域が広がり、励起子の生成上好ましいものとなる。

【0145】例えば、このような混合層の好ましい一態様として、前記のフェニルアントラセン誘導体とテトラアリールベンジジン誘導体との混合物に対し、ドーパントしてナフタセン誘導体をドーパした混合層がある。例えばナフタセン誘導体としてルブレンを用いた場合赤（発光極大波長540~600nm）の発光が可能になる。ナフタセン誘導体の添加は素子の長寿命化の観点から好ましい。このほかベンタセン誘導体も同様の利点を得られる。これらについては、特開平8-311442号公報、WO98/08360号、特願平10-137505号等に記載されている。

【0146】ナフタセン誘導体としては式(N)で表される化合物が好ましい。

【0147】

【化52】



【0148】式(N)において、R<sub>a</sub>、R<sub>b</sub>、R<sub>c</sub>およびR<sub>d</sub>はそれぞれ非置換、または置換基を有するアルキル基、アリール基、アミノ基、複素環基およびアルケニル基のいずれかを表し、アリール基、アミノ基、複素環基およびアルケニル基のいずれかであることが好ましい。

【0149】R<sub>e</sub>、R<sub>f</sub>、R<sub>g</sub>およびR<sub>h</sub>で表されるアリール基としては、単環もしくは多環のものであってよく、縮合環や環集合も含まれる。総炭素数は、6~30のものが好ましく、置換基を有していてもよい。

【0150】R<sub>e</sub>、R<sub>f</sub>、R<sub>g</sub>およびR<sub>h</sub>で表されるアリール基としては、好ましくはフェニル基、(o-, m-, p-)トリル基、ビレニル基、ペリレニル基、コロネニル基、(1-, 2-)ナフチル基、アントリル基、(o-, m-, p-)ビフェニル基、ターフェニル基、フェナントリル基等である。

【0151】R<sub>e</sub>、R<sub>f</sub>、R<sub>g</sub>およびR<sub>h</sub>で表されるアミノ基としては、アルキルアミノ基、アリールアミノ基、ア

ルキルアミノ基等いずれでもよい。これらは、総炭素数1~6の脂肪族、および/または1~4環の芳香族炭素環を有することが好ましい。具体的には、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジブチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、ビスジフェニルアミノ基、ビスナフチルアミノ基等が挙げられる。

【0152】R<sub>e</sub>、R<sub>f</sub>、R<sub>g</sub>およびR<sub>h</sub>で表される複素環基としては、ヘテロ原子としてO、N、Sを含有する5員または6員環の芳香族複素環基、および炭素数2~20の縮合多環芳香族複素環基等が挙げられる。芳香族複素環基および縮合多環芳香族複素環基としては、例えばチエニル基、フリル基、ピロリル基、ビリジル基、キノリル基、キノキサリル基等が挙げられる。

【0153】R<sub>e</sub>、R<sub>f</sub>、R<sub>g</sub>およびR<sub>h</sub>で表されるアルケニル基としては、少なくとも置換基の1つにフェニル基を有する(1-, および2-)フェニルアルケニル基、(1, 2-, および2, 2-)ジフェニルアルケニル基、(1, 2, 2-)トリフェニルアルケニル基等が好ましいが、非置換のものであってもよい。

【0154】R<sub>e</sub>、R<sub>f</sub>、R<sub>g</sub>およびR<sub>h</sub>が置換基を有する場合、これらの置換基のうちの少なくとも2つがアリール基、アミノ基、複素環基、アルケニル基およびアリールオキシ基のいずれかであることが好ましい。アリール基、アミノ基、複素環基およびアルケニル基については上記R<sub>e</sub>、R<sub>f</sub>、R<sub>g</sub>およびR<sub>h</sub>と同様である。

【0155】R<sub>e</sub>、R<sub>f</sub>、R<sub>g</sub>およびR<sub>h</sub>の置換基となるアリールオキシ基としては、総炭素数6~18のアリール基を有するものが好ましく、具体的には(o-, m-, p-)フェノキシ基等が挙げられる。

【0156】これら置換基の2種以上が縮合環を形成していてもよい。また、さらに置換されていてもよく、その場合の好ましい置換基としては上記と同様である。

【0157】R<sub>e</sub>、R<sub>f</sub>、R<sub>g</sub>およびR<sub>h</sub>が置換基を有する場合、少なくともその2種以上が上記置換基を有することが好ましい。その置換位置としては特に限定されるものではなく、メタ、パラ、オルト位のいずれでもよい。また、R<sub>e</sub>とR<sub>f</sub>、R<sub>g</sub>とR<sub>h</sub>はそれぞれ同じものであることが好ましいが、異なってもよい。

【0158】R<sub>e</sub>、R<sub>f</sub>、R<sub>g</sub>およびR<sub>h</sub>は、それぞれ水素または置換基を有していてもよいアルキル基、アリール基、アミノ基およびアルケニル基のいずれかを表す。

【0159】R<sub>e</sub>、R<sub>f</sub>、R<sub>g</sub>およびR<sub>h</sub>で表されるアルキル基としては、炭素数が1~6のものが好ましく、直鎖状であっても分岐を有していてもよい。アルキル基の好ましい具体例としては、メチル基、エチル基、(n, i)-プロピル基、(n, i, sec, tert)-ブチル基、(n, i, neo, tert)-ペンチル基等が挙げられる。

【0160】R<sub>e</sub>、R<sub>f</sub>、R<sub>g</sub>およびR<sub>h</sub>で表されるアリール基、アミノ基、アルケニル基としては、上記R<sub>e</sub>、















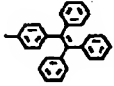
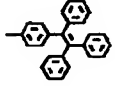
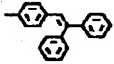
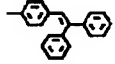
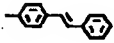





R<sub>b</sub>、R<sub>c</sub>およびR<sub>d</sub>の場合と同様である。また、R<sub>a</sub>とR<sub>e</sub>、R<sub>b</sub>とR<sub>f</sub>、R<sub>c</sub>とR<sub>g</sub>は、それぞれ同じものであることが好ましいが、異なってもよい。

\* 具体例は式(N)の表示の組合せにより示している。

[0162]













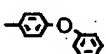
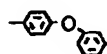


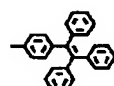
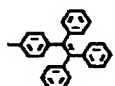
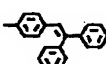
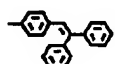

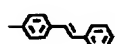








[化53]

[0161] ナフタセン誘導体の具体例を以下に示す。\*

No.	R <sub>a</sub>	R <sub>b</sub>	R <sub>c</sub>	R <sub>d</sub>	R <sub>e</sub>	R <sub>f</sub>	R <sub>g</sub>	R <sub>h</sub>
1	-Ph	-H	-H	-Ph	-H	-H	-H	-H
2		-H	-H		-H	-H	-H	-H
3		-H	-H		-H	-H	-H	-H
4		-H	-H		-H	-H	-H	-H
5		-H	-H		-H	-H	-H	-H
6		-H	-H		-H	-H	-H	-H
7		-H	-H		-H	-H	-H	-H
8		-H	-H		-H	-H	-H	-H
9		-H	-H		-H	-H	-H	-H
10		-H	-H		-H	-H	-H	-H
11		-H	-H		-H	-H	-H	-H
12		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>
13		-H	-H		-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>	-CH <sub>3</sub>

[0163]

[化54]



































67				68				
No.	R <sub>a</sub>	R <sub>b</sub>	R <sub>c</sub>	R <sub>d</sub>	R <sub>e</sub>	R <sub>f</sub>	R <sub>g</sub>	R <sub>h</sub>
14	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H	-H	-H
15		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H
16					-H	-H	-H	-H
17		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H
18					-H	-H	-H	-H
19		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H
20		-Ph	-Ph		-H	-H	-H	-H
21		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H
22		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H
23		-Ph		-Ph	-H	-H	-H	-H
24					-H	-H	-H	-H
25					-H	-H	-H	-H

[0164]

[化55]

69

70

No.	R <sub>a</sub>	R <sub>b</sub>	R <sub>c</sub>	R <sub>d</sub>	R <sub>e</sub>	R <sub>f</sub>	R <sub>g</sub>	R <sub>h</sub>
26	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H
27		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H
28					-Ph	-Ph	-H	-H
29	 -CH <sub>3</sub>	-Ph	 -CH <sub>3</sub>	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H
30		 -CH <sub>3</sub>		 -CH <sub>3</sub>	-Ph	-Ph	-H	-H
31	 -O- 	-Ph	 -O- 	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H
32		-Ph	-Ph		-Ph	-Ph	-H	-H
33		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H
34		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H
35	 -CH=CH- 	-Ph	 -CH=CH- 	-Ph	-Ph	-Ph	-H	-H
36					-Ph	-Ph	-H	-H
37					-Ph	-Ph	-H	-H

[0165]

[化56]

No.	R <sub>a</sub>	R <sub>b</sub>	R <sub>c</sub>	R <sub>d</sub>	R <sub>e</sub>	R <sub>f</sub>	R <sub>g</sub>	R <sub>h</sub>
38	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
39		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
40					-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
41		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
42					-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
43		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
44		-Ph	-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
45		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
46		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
47		-Ph		-Ph	-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
48					-Ph	-Ph	-Ph	-Ph
49					-Ph	-Ph	-Ph	-Ph

【0166】これらの化合物は1種のみ用いても2種以上用いてもよい。

【0167】混合層におけるナフタセン誘導体の使用量は0.1~20質量%であることが好ましい。

【0168】また、このような混合層におけるフェニルアントラセン誘導体とテトラアリールベンジジン誘導体との混合比はフェニルアントラセン誘導体/テトラアリールベンジジン誘導体の体積比が90/10~10/90であることが好ましい。その厚さは1~500nm、さらには10~200nmであることが好ましい。

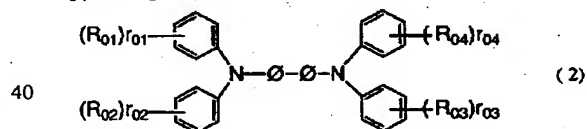
【0169】本発明では、青色発光層を含め、2層あるいは3層の発光層を設け、白色発光するような素子を構成することができる。

【0170】<ホール輸送および/または注入層>本発明では、一部前記したが、ホール輸送および/または注入層を設けることが好ましい。ホール輸送層を設け、その層中のホール注入輸送性化合物を発光層のホスト材料として用いるような態様でない場合においても、ホール輸送および/または注入層（ホール注入輸送層という場合もある）を設けることが好ましい。この場合のホール

注入輸送性化合物としては芳香族三級アミンを用いることが好ましく、式(1)で表されるテトラアリールベンジジン誘導体および式(2)で表されるトリフェニルアミン誘導体が好ましい。式(1)については前述のとおりである。式(2)について説明する。

【0171】

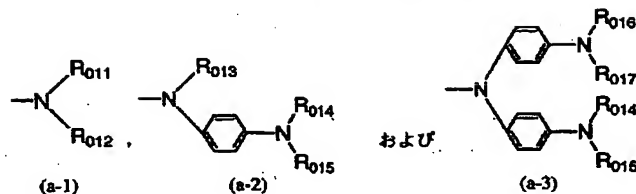
【化57】



【0172】式(2)において、2つのφはフェニレン基を表す。φ-φのビフェニレン基としては、4, 4'-ビフェニレン基、3, 3'-ビフェニレン基、3, 4'-ビフェニレン基、2, 2'-ビフェニレン基、2, 3'-ビフェニレン基、2, 4'-ビフェニレン基のいずれであってもよいが、特に4, 4'-ビフェニレン基が好ましい。

50 【0173】また、R<sub>01</sub>、R<sub>02</sub>、R<sub>03</sub>およびR<sub>04</sub>は、そ

れぞれ、アルキル基、アリール基、ジアリールアミノ  
 リール基、 \* 【0174】  
 \* 【化58】



(ここで、 $R_{011}$ 、 $R_{012}$ 、 $R_{013}$ 、 $R_{014}$ 、 $R_{015}$ 、 $R_{016}$ および $R_{017}$ は、それぞれ、アリール基を表す。)

【0175】のいずれかを表し、これらは同一でも異なるものであってもよい。ただし、 $R_{01} \sim R_{04}$ の少なくとも一つはジアリールアミノアリール基、または前記(a-1)～(a-3)のいずれかを表す。 $R_{011}$ 、 $R_{012}$ 、 $R_{013}$ 、 $R_{014}$ 、 $R_{015}$ 、 $R_{016}$ および $R_{017}$ で表されるアリール基は、それぞれ、無置換であっても置換基を有するものであってもよい。

【0176】 $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$ 、 $R_{04}$ で表されるアルキル基は置換基を有していてもよく、直鎖状でも分岐を有していてもよく、総炭素数1～20のものが好ましく、具体的にはメチル基、エチル基等が挙げられる。

【0177】 $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$ 、 $R_{04}$ 、 $R_{011}$ 、 $R_{012}$ 、 $R_{013}$ 、 $R_{014}$ 、 $R_{015}$ 、 $R_{016}$ および $R_{017}$ で表されるアリール基としては、単環または多環のものであってよく、総炭素数6～20のものが好ましく、具体的には、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ビレニル基、ペリレニル基およびo-、m-またはp-ビフェニル基等が挙げられる。これらアリール基はさらに置換されていてもよく、このような置換基としては、炭素数1～6のアルキル基、無置換もしくは置換基を有するアリール基またはアルコキシ基、アリーロキシ基および-N( $R_{011}$ ) $R_{012}$ 等が挙げられる。ここで、 $R_{011}$ および $R_{012}$ は、それぞれ、無置換または置換基を有するアリール基を表す。

【0178】 $R_{011}$ および $R_{012}$ で表されるアリール基としては、単環または多環のものであってよく、総炭素数6～20のものが好ましく、具体的には、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ビレニル基、ペリレニル基およびo-、m-またはp-ビフェニル基等が挙げられ、特に好ましくはフェニル基が挙げられる。これらアリール基はさらに置換されていてもよく、このような置換基としては、炭素数1～6のアルキル基、無置換または置換基を有するアリール基等が挙げられる。前記アルキル基としては好ましくはメチル基が挙げられ、前記アリール基としては好ましくはフェニル基が挙げられる。

【0179】また、 $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$ および $R_{04}$ で表されるジアリールアミノアリール基は、例えばジアリールアミノフェニル基であり、このような基においてジアリ

ールアミノ基が式(2)で表される骨格に対してメタ位(3位)またはパラ位(4位)に結合しているものが好ましい。このときのフェニル基は、さらに置換基を有していてもよいが、ジアリールアミノ基のみを有することが好ましい。

【0180】ジアリールアミノ基中のアリール基としては、単環または多環のものであってよく、総炭素数6～20のものが好ましく、具体的には、フェニル基、ナフチル基、アントリル基、フェナントリル基、ビレニル基、ペリレニル基およびo-、m-またはp-ビフェニル基等が挙げられ、特に好ましくはフェニル基が挙げられる。これらアリール基はさらに置換されていてもよく、このような置換基としては、炭素数1～6のアルキル基、無置換または置換基を有するアリール基等が挙げられる。前記アルキル基としては好ましくはメチル基が挙げられ、前記アリール基としては好ましくはフェニル基が挙げられる。また、アリール基の置換基としては、式(2)中の $R_{01} \sim R_{04}$ で表されるジアリールアミノアリール基以外の上記の基も好ましい。置換基を2以上有する場合、それらは同一でも異なってもよい。また、置換基は、Nの結合位置に対してメタ位あるいはパラ位に結合していることが好ましい。

【0181】また、式(2)において、 $r_{01}$ 、 $r_{02}$ 、 $r_{03}$ および $r_{04}$ は、それぞれ、0～5、好ましくは0～2の整数を表すが、特に0または1であることが好ましい。そして、 $r_{01} + r_{02} + r_{03} + r_{04}$ は、1以上、特に1～4、さらには2～4が好ましい。前記 $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$ および $R_{04}$ は、Nの結合位置に対してメタ位あるいはパラ位に結合し、 $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$ および $R_{04}$ の全てがメタ位、 $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$ および $R_{04}$ の全てがパラ位、あるいは、 $R_{01}$ 、 $R_{02}$ 、 $R_{03}$ および $R_{04}$ がメタ位あるいはパラ位に結合していても、これらが混在していてもよい。 $r_{01}$ 、 $r_{02}$ 、 $r_{03}$ または $r_{04}$ が2以上である場合、 $R_{01}$ 同士、 $R_{02}$ 同士、 $R_{03}$ 同士または $R_{04}$ 同士は同一でも異なってもよく、さらにはこれらの隣接するもの同士が互いに結合して環を形成してもよい。このような環はベンゼン環等の芳香族の環であっても、シクロヘキサン環等の脂肪族の環であってもよい。

【0182】式(2)の好ましい具体例を以下に示す

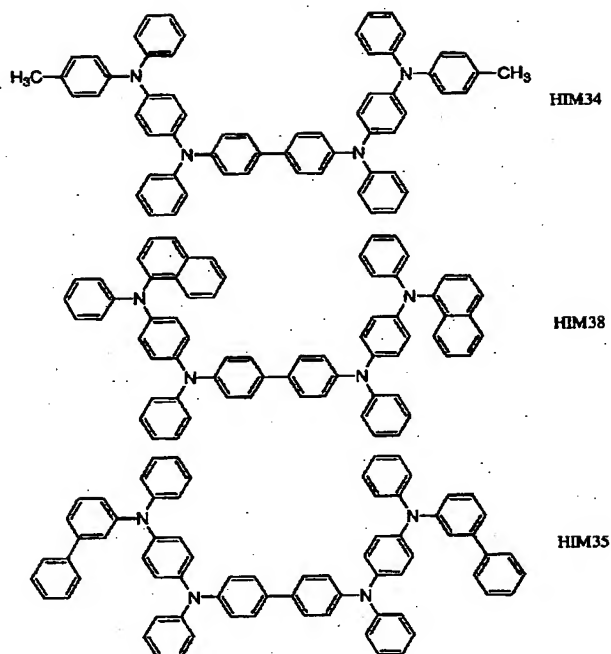


が、これに限定されるものではない。

【0183】

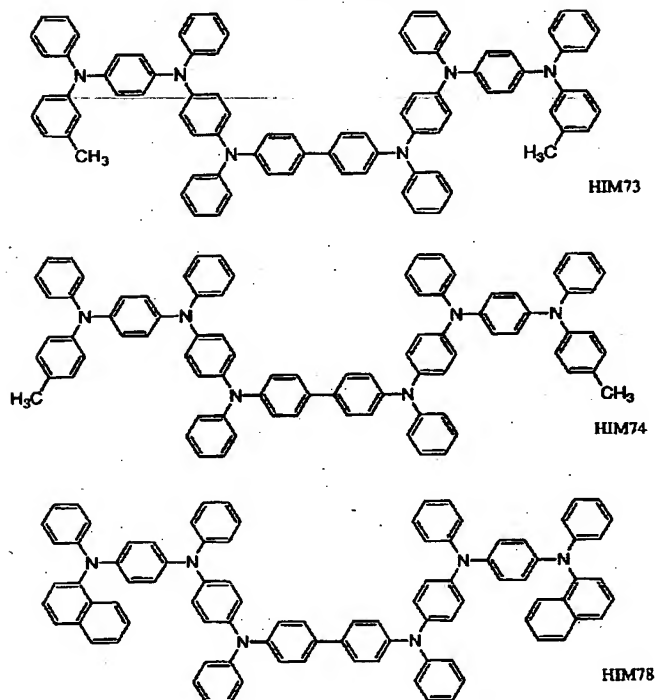
\*【化59】

\*



【0184】

※ ※【化60】



【0185】これらは1種のみ用いても2種以上併用してもよい。

【0186】発光層側から、ホール輸送層、ホール注入層を順に設けるときは、ホール輸送層に式(1)の化合

物を用い、ホール注入層に式(2)の化合物を用いることが好ましい。このような化合物を組み合わせることにより電子をブロックする機能が向上する。いずれにせよ、ホール輸送層にはベンジジン骨格を有し、フェニレ

ンジアミン骨格をもたない芳香族三級アミンを用いることが好ましく、ホール注入層にはフェニレンジアミン骨格をもつ芳香族三級アミンを用いることが好ましい。

【0187】ホール注入層の厚さは1~1000nm、さらには1~100nmが好ましく、ホール輸送層の厚さは1~200nm、さらには5~100nmが好ましい。これらの層を1層のみ設けるときは1~1000nm、さらには10~500nmの厚さとするのが好ましい。

【0188】＜電子輸送および／または注入層＞本発明では、一部前記したが、電子輸送および／または注入層を設けることが好ましい。電子輸送層を設け、その層中の電子注入輸送性化合物を発光層のホスト材料として用いるような態様でない場合においても、電子輸送および／または注入層（電子注入輸送層という場合もある）を設けることが好ましい。この場合の電子注入輸送性化合物としては前記のフェニルアントラセン誘導体のほか、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム（AlQ3）等の8-キノリノールないしその誘導体を配位子とする有機金属錯体などのキノリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ペリレン誘導体、ピリジン誘導体、ピリミジン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレン誘導体等を用いることができる。

【0189】特に、式（A）のジフェニルアントラン誘導体と8-キノリノールないしその誘導体を配位子とするアルミニウム錯体（特にトリス（8-キノリノラト）アルミニウム）とを用い、前者を発光層側の電子輸送層に用い、後者を陰極側の電子注入層に用いることも好ましい。なお、8-キノリノールないしその誘導体を配位子とするアルミニウム錯体についてはWO98/08360号等に関連されている。

【0190】電子注入層の厚さは1~1000nm、さらには1~100nmが好ましく、電子輸送層の厚さは1~500nm、さらには1~100nmが好ましい。これらの層を1層のみ設けるときは1~1000nm、さらには1~100nmの厚さとするのが好ましい。

【0191】＜陰極＞本発明において用いられる陰極材料には、アルカリ金属（Li、Na、K、Rb、Cs等）のハロゲン化物、酸化物を用いることが好ましい。具体的にはフッ化リチウム（LiF）、塩化リチウム（LiCl）、臭化リチウム（LiBr）、ヨウ化リチウム（LiI）、フッ化ナトリウム（NaF）、塩化ナトリウム（NaCl）、臭化ナトリウム（NaBr）、ヨウ化ナトリウム（NaI）、フッ化ルビジウム（RbF）、塩化ルビジウム（RbCl）、臭化ルビジウム（RbBr）、ヨウ化ルビジウム（RbI）、フッ化セシウム（CsF）、塩化セシウム（CsCl）、臭化セシウム（CsBr）、ヨウ化セシウム（CsI）のハロゲン化物や、酸化リチウム（Li<sub>2</sub>O）、酸化ナトリウム（Na<sub>2</sub>O）等の酸化物が挙げられる。特にRb、C

s等のハロゲン化物、とりわけ塩化物、ヨウ化物が好ましい。

【0192】アルカリ金属のハロゲン化物、酸化物を下層とし、さらに仕事関数の小さい材料（例えば、Li、Na、K、Mg、Al、Ag、In、あるいは、これらの1種以上を含む合金）で積層してもよい。陰極は、結晶粒が細かいことが好ましく、特にアモルファス状態であることが好ましい。陰極の合計厚さは10~1000nm程度とすることが好ましい。下層を用いた構成での下層の厚さは0.1~1nm程度である。

【0193】陰極材料としてアルカリ金属のハロゲン化物、酸化物を用いることは、青色発光層を有する素子では特に有効であり、青色発光を安定して得ることができる。青色発光系ではホストのエネルギーギャップが緑系に比べ大きいので、より高効率の電子注入性とホール注入性が要求される。従来のMgAgのような陰極では電子注入効率が悪く、これにかわる高効率な材料としてアルカリ金属系が有効である。それは仕事関数が小さいためである。また、ハロゲン化物、酸化物の形態をとっても仕事関数は変化しないし、あるいは電界がかかったときに還元等が起こり金属になり得る。よって取り扱いが容易な電子注入材料として最適である。また、有機膜と電極との密着向上の効果もある。

【0194】アルカリ金属のハロゲン化物、酸化物を陰極材料として用いることは、特に、青色発光層にその隣接層となる電子輸送層やホール輸送層の電子注入輸送性化合物やホール注入輸送性化合物をホスト材料として用いない態様においては必須である。

【0195】また、陰極界面の有機物層にLi等の金属をドーブしてもよい。

【0196】また、電極形成の最後にAlや、フッ素系化合物を蒸着・スパッタすることで封止効果が向上する。

【0197】なお、トリス（8-キノリノラト）アルミニウム（AlQ3）等を電子注入および／または輸送層に用い、陰極をスパッタにより形成するような場合、電子注入および／または輸送層に対するスパッタによるダメージを防止するために、電子注入および／または輸送層と陰極との間にルブレイン等のナフタセン誘導体（前記）の層を0.1~20nm厚に形成することができる。

【0198】＜陽極＞有機EL素子を面発光させるためには、少なくとも一方の電極が透明ないし半透明である必要があり、上記のように陰極の材料には制限があるので、好ましくは発光光の透過率が80%以上となるように陽極の材料および厚さを決定することが好ましい。具体的には、例えば、ITO（錫ドーブ酸化インジウム）、IZO（亜鉛ドーブ酸化インジウム）、SnO<sub>2</sub>、Ni、Au、Pt、Pd、ドーバントをドーブしたポリピロールなどを陽極に用いることが好ましく、特にITO、IZOが好ましい。ITOは、通常In<sub>2</sub>O

、とSnOとを化学量論組成で含有するが、酸素量は多少これから偏倚していてもよい。IZOは、通常In、O、とZnOとを化学量論組成で含有するが、酸素量は多少これから偏倚していてもよい。In、O、に対するSnO<sub>2</sub>の混合比は、1~20質量%、さらには5~12質量%が好ましい。また、IZOでのIn、O、に対するZnOの混合比は、通常、12~32質量%程度である。また、陽極の厚さは10~500nm程度とすることが好ましい。また、素子の信頼性を向上させるために駆動電圧が低いことが必要であるが、好ましいものとして10~30Ω/□または10Ω/□以下（通常0.1~10Ω/□）のITOが挙げられる。

【0199】また、ディスプレイのような大きいデバイスにおいては、ITOの抵抗が大きくなるのでAl配線をしてよい。

【0200】＜基板材料＞基板材料に特に制限はないが、基板側から発光光を取り出すためには、ガラスや樹脂等の透明ないし半透明材料を用いる。また、基板にカラーフィルター膜や蛍光性物質を含む蛍光変換フィルター膜、あるいは誘電体反射膜を用いたり、基板自身に着

色したりして発光色をコントロールしてもよい。【0201】カラーフィルター膜には、液晶ディスプレイ等で用いられているカラーフィルターを用いればよいが、有機EL素子の発光する光に合わせてカラーフィルターの特性を調整し、取り出し効率・色純度を最適化すればよい。

【0202】また、EL素子材料や蛍光変換層が光吸収するような短波長の外光をカットできるカラーフィルターを用いれば、素子の耐光性・表示のコントラストも向上する。

【0203】また、誘電体多層膜のような光学薄膜を用いてカラーフィルターの代わりにしてもよい。

【0204】蛍光変換フィルター膜は、EL発光の光を吸収し、蛍光変換膜中の蛍光体から光を放出させることで、発光色の色変換を行うものであるが、組成としては、バインダー、蛍光材料、光吸収材料の三つから形成される。

【0205】蛍光材料は、基本的には蛍光量子収率が高いものを用いればよく、EL発光波長域に吸収が強いことが好ましい。実際には、レーザー色素などが適しており、ローダミン系化合物・ペリレン系化合物・シアニン系化合物・フタロシアニン系化合物（サブフタロシアニン等も含む）・ナフタロイミド系化合物・縮合環炭化水素系化合物・縮合複素環系化合物・スチリル系化合物・クマリン系化合物等を用いればよい。

【0206】バインダーは基本的に蛍光を消光しないような材料を選ばよく、フォトリソグラフィー・印刷等で微細なパターンニングができるようなものが好ましい。また、ITOの成膜時にダメージを受けないような材料が好ましい。

【0207】光吸収材料は、蛍光材料の光吸収が足りない場合に用いるが、必要のない場合は用いなくてもよい。光吸収材料は、蛍光性材料の蛍光を消光しないような材料を選ばよい。

【0208】＜カラーフィルターを用いた発光色変調＞本発明では、前述の有機EL素子とカラーフィルターとを組み合わせることによって、前述の有機EL素子の発光色を変調させることができ、これにより、多色発光有機ELディスプレイ（多色発光装置）が容易に提供できる。

【0209】こうした装置に前述の有機EL素子を適用する場合、前述の有機EL素子は、互いに対向する一対の電極間に、発光層を含む有機EL素子が挟持され、少なくとも一方の電極は透明電極であることが好ましいが、カラーフィルターが用いられるので、少なくとも一方の電極は透明電極であることが必要であり、透明電極側から発光光を取り出すため、カラーフィルターは透明電極側に設置される。

【0210】ここで、有機層とは有機化合物を含有する層をいい、有機化合物には有機化合物を配位子とする金属錯体や有機金属化合物などを含むものとする。

【0211】上記の装置は、セグメント型の表示部を有するものであっても、ドットマトリックス型の表示部を有するものであってもよいが、これら両方の表示部を備えるものであってもよい。

【0212】ドットマトリックス型の表示部は、互いに対向し、かつ交差するように、一対の複数の電極が配列されたXYマトリックス型電極を有し、この交差部分の電極間に有機層を挟持させることによって画素を形成したものである。カラーフィルターはこの画素の透明電極側に設置することが好ましい。また、画素の周辺部であって、カラーフィルター設置部位近傍（通常カラーフィルター間）にはブラックマトリックスを設置することが好ましい。ブラックマトリックスによりカラーフィルター間の漏れ光を防止することができ、これにより多色発光の視認性を高めることができる。

【0213】ここで、画素とは他の領域とは独立に励起されて発光することができる画像表示配列の領域をいう。

【0214】上記の複数の電極は、通常ストライプ状電極であり、一対の電極はほぼ直交するように配列される。なお、製造上、ストライプ状電極は、一方の電極を形成した後に他方の電極が形成されることが多く、また、層間絶縁膜を用いてドットマトリックス型の表示部が形成されることが多いため、後に形成される他方のストライプ状電極がほぼ同一平面上に形成されない場合や、一本の同一方向のストライプが連続膜とならない場合などが生じ得るが、ほぼ直交する交差部分が存在しさえすれば差しかえない。

【0215】例えば、ドットマトリックス型表示部を形

成する方法としては次の方法がある。透明基板（ガラス等）上に所定のカラーフィルター層を形成し、このカラーフィルター層の透明電極形成面に、好ましくはこの面の平坦性を向上させるために、アクリル樹脂やポリイミド等の透明樹脂で形成された $1\mu\text{m}\sim 5\text{mm}$ 厚のオーバーコート層を設ける。このオーバーコート層はカラーフィルターの保護層としても機能する。このオーバーコート層をバタニングし、バタニングしたオーバーコート層上に透明電極を形成する。なお、透明電極層とオーバーコート層との間にはバッシュン層として透明かつ電気絶縁性無機酸化物層を設けてもよい。

【0216】バタニングした透明電極層を含む面に、 $10\text{nm}\sim 100\mu\text{m}$ 厚の層間絶縁膜を設け、透明電極形成部位以外の部位に絶縁膜が残るようにする。絶縁膜は、 $\text{SiO}_2$ 、 $\text{SiN}$ 等の無機化合物のほか、ポリイミド、アクリル樹脂、エポキシ樹脂等の樹脂で形成することができる。

【0217】さらに、この場合、絶縁膜のほかに、絶縁膜上にスペーサーを形成したり、スペーサー上にさらにスペーサーより幅の大きいオーバーハング体を形成したりして、素子分離する方法もある（特開平9-330792号等）。

【0218】この後、前述の有機EL素子中の発光層を含む有機層を形成し、さらに対電極を前記の透明電極と交差するように設ければ電極対の交差部分に発光機能をもたせることができる。上記の絶縁膜は、素子形成後においても、残すようにすることが好ましく、上記の絶縁膜の存在により、基板面から見えない部分での無駄な発光を避けることができる。また、ブラックマトリックスを用いる場合は、カラーフィルター層間に、ブラックマトリックス層を設置すればよい。

【0219】＜カラーフィルターおよびブラックマトリックス＞

#### i) カラーフィルター

本発明に用いられるカラーフィルターとしては、例えば、下記の色素のみまたは、色素をバインダー樹脂中に溶解または分散させた固体状態のものを挙げることができる。

【0220】赤色（R）色素：ペリレン系顔料、レーキ顔料、アゾ系顔料、キナクリドン系顔料、アントラキノ系顔料、アントラセン系顔料、イソインドリン系顔料、イソインドリノン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

【0221】緑色（G）色素：ハロゲン多置換フタロシアニン系顔料、ハロゲン多置換銅フタロシアニン系顔料、トリフェルメタン系塩基性染料、イソインドリン系顔料、イソインドリノン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

【0222】青色（B）色素：銅フタロシアニン系顔料、インダンスロン系顔料、インドフェノール系顔料、

シアニン系顔料、ジオキサジン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

【0223】一方、バインダー樹脂は、透明な（可視光50%以上）材料が好ましい。例えば、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂（高分子）が挙げられる。

【0224】なお、カラーフィルターを平面的に分離配置するために、フォトリソグラフィ法が適用できる感光性樹脂も選ばれる。例えば、アクリル酸系、メタクリル酸系、ポリケイ皮酸ビニル系、環ゴム系等の反応性ビニル基を有する光硬化型レジスト材料が挙げられる。また、印刷法を用いる場合には、透明な樹脂を用いた印刷インキ（メジウム）が選ばれる。例えば、ポリ塩化ビニル樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂のモノマー、オリゴマー、ポリマーからなる組成物、また、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂を用いることができる。

【0225】カラーフィルターが主に色素からなる場合は、所望のカラーフィルターパターンのマスクを介して真空蒸着またはスパッタリング法で成膜され、一方、色素とバインダー樹脂からなる場合は、蛍光色素と上記樹脂およびレジストを混合、分散または可溶化させ、スピンコート、ロールコート、キャスト法等の方法で成膜し、フォトリソグラフィ法で所望のカラーフィルターパターンでバタニングしたり、印刷等の方法で所望のカラーフィルターのパターンでバタニングし、熱処理して硬化させるのが一般的である。

【0226】それぞれのカラーフィルターの膜厚と透過率は、下記とすることが好ましい。R：膜厚 $0.5\sim 20\mu\text{m}$ （透過率50%以上/ $610\text{nm}$ ）、G：膜厚 $0.5\sim 20\mu\text{m}$ （透過率50%以上/ $545\text{nm}$ ）、B：膜厚 $0.2\sim 20\mu\text{m}$ （透過率50%以上/ $460\text{nm}$ ）

【0227】また、特にカラーフィルターが色素とバインダー樹脂からなるものは、色素の濃度が、カラーフィルターが問題なくバタニングできて、かつ、有機EL素子の発光を十分透過できる範囲であればよい。色素の種類にもよるが、使用するバインダー樹脂を含めたカラーフィルター膜に色素が5～50質量%含まれる。

#### 【0228】ii) ブラックマトリックス

本発明に用いられるブラックマトリックスとしては、例えば、下記の金属および金属酸化物薄膜、並びに黒色色素を挙げることができる。金属および金属酸化物薄膜の具体例としては、クロム（Cr）、ニッケル（Ni）、

銅(Cu)等の金属およびその酸化物の薄膜を挙げることができる。上記金属および金属酸化物の混合物としては、光学濃度3.0以上(膜厚10~300nm(100~3000Å))のものが好ましい。

【0229】黒色色素の具体例としては、カーボンブラック、チタンブラック、アニリンブラックまたはカラーフィルターの色素を混合して、黒色化したもの、またはカラーフィルターと同じように上記色素をバインダー樹脂中に溶解または分散させた固体状態のものを挙げることができる。

【0230】金属および金属酸化物薄膜は、スパッタリング法、蒸着法、CVD法等により絶縁性基板全面か、マスキングの手法により少なくとも表示部全面に成膜後、フォトリソグラフィ法によりパターンニングを行って、ブラックマトリックスのパターンを形成することができる。

【0231】黒色色素を用いた場合は、カラーフィルターの場合と同様にパターンニングして、ブラックマトリックスを形成することができる。

【0232】<保護層(透明平坦膜)>本発明において、必要に応じて用いられる保護層(透明平坦膜)は、カラーフィルター(ブラックマトリックスを含む)が物理的に傷つくこと、外部の環境因子(水、酸素、光)により劣化するのを保護するために用いられる。その材料としては、透明な(可視光50%以上)材料であることが好ましい。

【0233】具体的には、光硬化型樹脂および/または熱硬化型樹脂のように、アクリレート系、メタクリレート系の反応性ビニル基を有するものを挙げることができる。また、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂のモノマー、オリゴマー、ポリマー、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ポリイミド、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂を挙げることができる。カラーフィルターおよび有機EL素子の耐光性を高めるために、保護層中に紫外線吸収剤を添加することもできる。

【0234】保護層は、上記材料を、液状の場合はスピンコート、ロールコート、キャスト法等の方法で成膜し、光硬化型樹脂は光の照射後必要に応じて熱硬化させ、熱硬化型は成膜後そのまま熱硬化させる。フィルム状の場合は、そのまま、粘着剤を塗布して貼着してもよい。

【0235】保護層の厚さは、視野角にほとんど影響を及ぼさないで、特に制限はないが、厚くなりすぎると、光の透過率に影響を及ぼすので、通常1μm~5mmの範囲で選ぶことができる。

【0236】<透明かつ電気絶縁性無機酸化物層>本発

明に用いられる透明かつ電気絶縁性無機酸化物層は、例えば、蒸着またはスパッタリング、ディッピング等でカラーフィルター上または保護層上に積層することによって形成することができる。なお、この透明かつ電気絶縁性無機酸化物層は、単層であっても、二層以上の複層であってもよい。例えば、二層とすることによって、下層の無機酸化物層(例えばソーダー-石灰ガラスなど)からの無機イオンの溶出を上層の無機酸化物層で抑え、溶出イオンから有機EL素子を保護することができる。

10 【0237】その材料としては、酸化ケイ素(SiO<sub>2</sub>)、酸化アルミニウム(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、酸化チタン(TiO<sub>2</sub>)、酸化イットリウム(Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、酸化ゲルマニウム(GeO<sub>2</sub>)、酸化亜鉛(ZnO)、酸化マグネシウム(MgO)、酸化カルシウム(CaO)、ほう酸(B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)、酸化ストロンチウム(SrO)、酸化バリウム(BaO)、酸化鉛(PbO)、ジルコニア(ZrO<sub>2</sub>)、酸化ナトリウム(Na<sub>2</sub>O)、酸化リチウム(Li<sub>2</sub>O)、酸化カリウム(K<sub>2</sub>O)等を挙げることができるが、酸化シリコン、酸化アルミニウム、酸化チタンが、その層(膜)の透明性が高く、その成膜温度が比較的低温(250℃以下)であり、カラーフィルタまたは保護層をほとんど劣化させないので好ましい。

【0238】また、透明かつ電気絶縁性無機酸化物層として、ガラス板、または、上記の酸化ケイ素、酸化アルミニウム、および酸化チタン等からなる群から選ばれる一種以上の化合物を、透明な絶縁性のガラス板の上面または下面の少なくとも一方に成膜したガラス板の場合、カラーフィルタ上または保護層上に貼り合わせるだけの低温(150℃以下)操作が可能であり、カラーフィルタ上または保護層を全く劣化させないのでより好ましい。また、ガラス板は、特に水蒸気、酸素またはモノマー等の劣化ガスを遮断する効果が大きい。

【0239】ガラス板の組成としては、表1または表2に示すものを挙げることができる。特に、ソーダー-石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸塩ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス等を挙げることができる。なお、ここで電気絶縁性無機酸化物層は、その組成として、無機酸化物を主に含むものであればよく、窒化物(例えばSi<sub>3</sub>N<sub>4</sub>)が含まれていてもよい。

【0240】透明かつ電気絶縁性無機酸化物層の膜厚は、有機EL素子の発光を妨げないものであれば特に制限はないが、本発明では、0.01μm以上200μm以下が好ましい。ガラス板、または、上記の酸化ケイ素、酸化アルミニウム、および酸化チタン等からなる群から選ばれる一種以上の化合物を、透明な絶縁性のガラス板の上面または下面の少なくとも一方に成膜したガラス板は、板ガラスの精度、強度上、1μm以上200μm以下が好ましい。なお、ここで、透明かつ電気絶縁性無機酸化物層の膜厚が、小さくなると、無機酸化物粒子

の単層膜に近づき、カラーフィルターまたは保護層の有機物から発生する水蒸気、酸素またはモノマー等の劣化ガスを遮断することが困難となり、膜厚が大きくなる  
と、カラーフィルターの精細度にもよるが、有機EL素子の発光がカラーフィルターとのギャップから漏れた \*

\*し、多色発光の視野角を狭めて、多色発光装置の実用性を低下させることがある。

【0241】

【表1】

ガラス組成系	
1) $R_2O-R'_2O-SiO_2$ ・ $Na_2O-CaO/MgO-SiO_2$ (ソーダ石灰ガラス) ・ $Na_2O/K_2O-BaO/SrO-SiO_2$ ・ $Na_2O/K_2O-CaO/ZnO-SiO_2$	
2) $R_2O-PbO-SiO_2$ ・ $K_2O/Na_2O-PbO-SiO_2$ (鉛ガラス)	
3) $R_2O-B_2O_3-SiO_2$ ・ $Na_2O-B_2O_3-SiO_2$ (ホウケイ酸ガラス) ・ $K_2O-B_2O_3-SiO_2$	
4) $R'_2O-B_2O_3-SiO_2$ ・ $PbO-B_2O_3-SiO_2$ ・ $PbO/ZnO-B_2O_3-SiO_2$ ・ $PbO-B_2O_3-SiO_2$ + (ファイラー) ・ $ZnO-B_2O_3-SiO_2$	
5) $R'_2O-Al_2O_3-SiO_2$ ・ $CaO/MgO-Al_2O_3-SiO_2$ (アルミノケイ酸塩ガラス) ・ $MgO-Al_2O_3-SiO_2$ ・ $PbO/ZnO-Al_2O_3-SiO_2$	
6) $R_2O-Al_2O_3-SiO_2$ ・ $Li_2O-Al_2O_3-SiO_2$ ・ $Na_2O-Al_2O_3-SiO_2$	
7) $R'_2O-TiO_2-SiO_2$ ・ $BaO-TiO_2-SiO_2$	
8) $R_2O-ZrO_2-SiO_2$ ・ $Na_2O/Li_2O-ZrO_2-SiO_2$	
9) $R'_2O-P_2O_5-SiO_2$ ・ $CaO-P_2O_5-SiO_2$	
10) $R'_2O-SiO_2$ ・ $CaO/BaO/PbO-SiO_2$	
11) $SiO_2$	
12) $R_2O-R'_2O-B_2O_3$ ・ $Li_2O-BeO-B_2O_3$	
13) $R'_2O-R_2O_3-B_2O_3$ ・ $CaO/BaO-Al_2O_3-B_2O_3$ ・ $CaO/PbO-Lu_2O_3-B_2O_3$	
14) $R_2O-Al_2O_3-P_2O_5$ ・ $K_2O-Al_2O_3-P_2O_5$	
15) $R'_2O-Al_2O_3-P_2O_5$ ・ $BaO/CaO-Al_2O_3-P_2O_5$ ・ $ZnO-Al_2O_3-P_2O_5$	

R' : 1価の元素  
R : 2価の元素  
R : 3価の元素

【0242】

【表2】

区 分	組 成 物 (主として1〜3成分系として表わす)
1 単結晶化合物	SiO <sub>2</sub> , B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , GeO <sub>2</sub> , As <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
2 ケイ酸塩	Li <sub>2</sub> O-SiO <sub>2</sub> , Na <sub>2</sub> O-SiO <sub>2</sub> , K <sub>2</sub> O-SiO <sub>2</sub> MgO-SiO <sub>2</sub> , CaO-SiO <sub>2</sub> , BaO-SiO <sub>2</sub> , PbO-SiO <sub>2</sub> Na <sub>2</sub> O-CaO-SiO <sub>2</sub> Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub>
3 ホウ酸塩	Li <sub>2</sub> O-B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , Na <sub>2</sub> O-B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , K <sub>2</sub> O-B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> MgO-B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , CaO-B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , PbO-B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Na <sub>2</sub> O-CaO-B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , ZnO-PbO-B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , SiO <sub>2</sub> -B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
4 リン酸塩	Li <sub>2</sub> O-P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> , Na <sub>2</sub> O-P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> MgO-P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> , CaO-P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> , BaO-P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> K <sub>2</sub> O-BaO-P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> , SiO <sub>2</sub> -P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> , B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> V <sub>2</sub> O <sub>5</sub> -P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> , Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> , WO <sub>3</sub> -P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>
5 ゲルマン酸塩ガラス	Li <sub>2</sub> O-GeO <sub>2</sub> , Na <sub>2</sub> O-GeO <sub>2</sub> , K <sub>2</sub> O-GeO <sub>2</sub> B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -GeO <sub>2</sub> , SiO <sub>2</sub> -GeO <sub>2</sub>
6 タングステン酸塩	Na <sub>2</sub> O-WO <sub>3</sub> , K <sub>2</sub> O-WO <sub>3</sub>
7 モリブデン酸塩	Na <sub>2</sub> O-MoO <sub>3</sub> , K <sub>2</sub> O-MoO <sub>3</sub> , Li <sub>2</sub> O-MoO <sub>3</sub>
8 テルル酸塩	Na <sub>2</sub> O-TeO <sub>2</sub>
9 ホウケイ酸塩	Na <sub>2</sub> O-B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub>
10 アルミノケイ酸塩	Na <sub>2</sub> O-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub> , CaO-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub>
11 アルミノホウ酸塩	CaO-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> , ZnO-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
12 アルミノホウケイ酸塩	Na <sub>2</sub> O-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub>
13 フッ化物	BeF <sub>2</sub> , NaF-BeF <sub>2</sub> ZrF <sub>4</sub> -BaF <sub>2</sub> -ThF <sub>4</sub> , GdF <sub>3</sub> -BaF <sub>2</sub> -ZrF <sub>4</sub>
14 フッリン酸塩	Al(PO <sub>3</sub> ) <sub>3</sub> -AlF <sub>3</sub> -NaF-CaF <sub>2</sub>
15 オキシハロゲン化合物	Ag <sub>2</sub> O-AgI-P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>
16 オキシナイトライド	MgO-Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -AlN-SiO <sub>2</sub>

【0243】＜有機EL素子の製造方法＞次に、本発明の有機EL素子の製造方法を説明する。陽極は、蒸着法やスパッタ法等の気相成長法により形成することが好ましい。

【0244】陰極は、蒸着法やスパッタ法で形成することが可能であるが、有機層上に成膜する点を考慮すると、有機層へのダメージの少ない蒸着法が好ましい。

【0245】発光層等の有機層の形成には、均質な薄膜が形成できることから真空蒸着法を用いることが好ましい。真空蒸着法を用いた場合、アモルファス状態または結晶粒径が0.1μm以下（通常、下限値は0.001μm程度である。）の均質な薄膜が得られる。結晶粒径が0.1μmを超えていると、不均一な発光となり、素子の駆動電圧を高くしなければならなくなり、電荷の注入効率も著しく低下する。

【0246】真空蒸着の条件は特に限定されないが、10<sup>-3</sup>Pa以下の真空度とし、蒸着速度は0.1〜1nm/sec程度とすることが好ましい。また、真空中で連続して各層を形成することが好ましい。真空中で連続して形成すれば、各層の界面に不純物が吸着することを防げるため、高特性が得られる。また、素子の駆動電圧を低くしたり、ダークスポットの発生・成長を抑えたりすること

ができる。

【0247】これら各層の形成に真空蒸着法を用いる場合において、混合層等、1層に複数の化合物を含有させる場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して異なる蒸着源より蒸発させる共蒸着が好ましいが、蒸気圧（蒸発温度）が同程度あるいは非常に近い場合には、予め同じ蒸着ボード内で混合させておき、蒸着することもできる。

【0248】また、この他、溶液塗布法（スピンコート、ディップ、キャスト等）、ラングミュア・プロジェクト（LB）法などを用いることもできる。溶液塗布法では、ポリマー等のマトリックス物質（樹脂バインダー）中に各化合物を分散させる構成としてもよい。なお、カラーフィルターの形成方法については前述のとおりである。

【0249】本発明の有機EL素子は、通常、直流駆動型のEL素子として用いられるが、交流駆動またはパルス駆動することもできる。印加電圧は、通常、2〜10V程度と従来のものよりも低い。

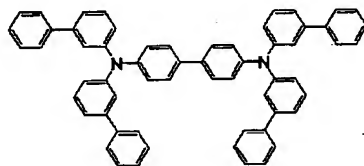
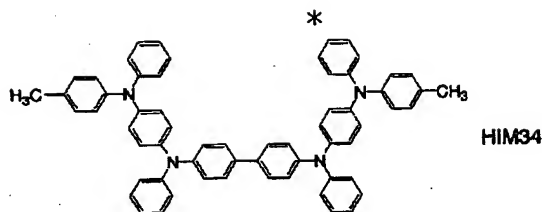
【0250】

【実施例】以下、本発明の実施例を参考例とともに示し、本発明をさらに詳細に説明する。実施例で使用した

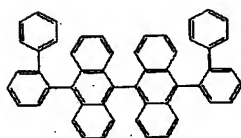
化合物の構造式を示す。  
【0251】

89

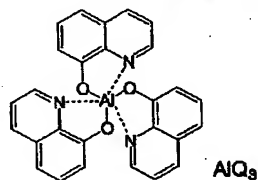
\*【化61】



テトラアリアルベンジジン誘導体(No.I-1)



フェニルアントラセン誘導体(No.I-1)

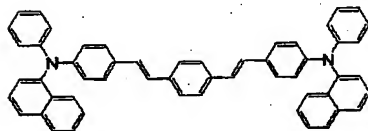
AlQ<sub>3</sub>

【0252】

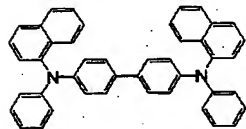
※ ※【化62】



ナフタセン誘導体(No.20)



スチリルアミン誘導体(S-9)



N,N'-ジ(1-ナフチル)-N,N'-ジフェニルベンジジン(NPB)

【0253】＜実施例1＞ガラス基板上に、ITO透明電極（陽極）をスパッタ法にて100nm成膜した。

【0254】そして、ITO透明電極を成膜したガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を煮沸エタノール中から引き上げて乾燥し、UV/O<sub>3</sub>洗浄した後、真空蒸着装置の基板

ホルダーに固定して、真空槽を $1 \times 10^{-4}$  Pa以下まで減圧した。

【0255】次いで、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス[N-フェニル-N-4-トリル(4-アミノフェニル)]ベンジジン(HIM34)を蒸着速度0.2nm/secで20nmの厚さに蒸着し、ホール注入層とした。



【0256】N,N,N',N'-テトラキス-(3-ピフェニル-1-イル)ベンジジン(テトラアリアルベンジジン誘導体(No.I-1))を蒸着速度0.2nm/secで20nmの厚さに蒸着し、ホール輸送層とした。

【0257】さらに、テトラアリアルベンジジン誘導体(No.I-1)と10,10'-ビス[2-ピフェニルイル]-9,9'-ピアンシリル(フェニルアントラセン誘導体(No.1-1))とを体積比が1:3となるように、かつナフタセン誘導体(No.20)を3.0vol%含むように30nmの厚さに共蒸着し、混合層タイプの第一の発光層とした。このときの蒸着速度は順に0.05nm/sec、0.15nm/sec、0.006nm/secとした。

【0258】また、テトラアリアルベンジジン誘導体(No.I-1)とフェニルアントラセン誘導体(No.1-1)とを体積比が1:3となるように、かつスチリルアミン誘導体(S-9)を3.0vol%含むように50nmの厚さに共蒸着し、混合層タイプの第二の青色発光層とした。このときの蒸着速度は順に0.05nm/sec、0.15nm/sec、0.006nm/secとした。

【0259】次いで、減圧状態を保ったまま、フェニルアントラセン誘導体(No.1-1)を蒸着速度0.05nm/secで20nmの厚さに蒸着し、電子輸送層とした。また、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(A1Q3)を蒸着速度0.2nm/secで10nmの厚さに蒸着し、電子注入層とした。

【0260】さらに、減圧を保ったまま、CsIを蒸着速度0.05nm/secで、0.2nmの厚さに蒸着し、この上にMgAg(質量比10:1)を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに蒸着して陰極とし、保護層としてAlを100nm蒸着し有機EL素子を得た。

【0261】このような有機EL素子は、図1に示されるように、基板1上に陽極2を有し、その上にホール注入層3、ホール輸送層4、混合層タイプの第一の発光層5、混合層タイプの第二の発光層6、電子輸送層7、および電子注入層8をこの順に有し、さらにこの上に、アルカリ金属化合物で形成された陰極下層9と仕事関数の小さい金属で形成された陰極上層10とで構成された陰極を有し、基板1側から発光光を取り出すものである。

【0262】この有機EL素子を、10mA/cm<sup>2</sup>の定電流密度で駆動したところ、初期輝度は1100cd/m<sup>2</sup>、駆動電圧6.0Vであった。発光色は白色であった。また、輝度の半減期は、100mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動で初期輝度9000cd/cm<sup>2</sup>、駆動電圧9.9Vで600時間であり、10mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動で初期輝度1100cd/cm<sup>2</sup>、駆動電圧6.0Vで50000時間であった。

【0263】＜実施例2＞実施例1の素子において、(テトラアリアルベンジジン誘導体(No.I-1))の代わりに、N,N'-ジ(1-ナフチル)-N,N'-ジフェニルベンジジン(NPB)を用いるほかは同様にして素子を得、同様に特性を評価したところ、白色発光が得ら

れ、100mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動で初期輝度9000cd/cm<sup>2</sup>、駆動電圧9.8Vで、輝度半減期500時間であり、10mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動で初期輝度1100cd/cm<sup>2</sup>、駆動電圧5.5Vで、輝度半減期35000時間であった。

【0264】＜実施例3＞実施例1の素子において、混合層タイプの第1の発光層を設けないものとするほかは同様にして素子を得、同様に特性を評価したところ、青色発光が得られ、100mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動で初期輝度8500cd/m<sup>2</sup>、駆動電圧7.8Vで、輝度半減期500時間であり、10mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動で初期輝度900cd/m<sup>2</sup>、駆動電圧6.0Vで、輝度半減期30000時間であった。

【0265】なお、実施例1、3の有機EL素子の発光スペクトルを図2に示す。実施例1の有機EL素子は白色、実施例3の有機EL素子は青色の発光を示す。

【0266】＜参考例1＞実施例1と同様に素子を作製した。ただし、電子注入電極として用いたヨウ化セシウムを用いず、A1Q3の上に直接MgAgを蒸着し、電極とした。

【0267】10mA/cm<sup>2</sup>での輝度は400cd/m<sup>2</sup>で駆動電圧9.0Vのオレンジ発光となった。発光スペクトルを測定したところ、90%以上がナフタセン誘導体(No.20)からの発光であった。

【0268】また、発光寿命を測定したところ、100mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動での輝度は4000cd/m<sup>2</sup>で輝度半減時間は4時間であった。特に青色発光の強度の低下が大きかった。

【0269】＜参考例2＞実施例1と同様に素子を作製した。ただし、発光層を(テトラアリアルベンジジン誘導体(No.I-1))とフェニルアントラセン誘導体(No.1-1)の混合層ホストからフェニルアントラセン誘導体(No.1-1)の単独ホストとし、ナフタセン誘導体(No.20)とスチリルアミン誘導体(S-9)を同様にドーピングした。

【0270】10mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動での輝度は900cd/m<sup>2</sup>で駆動電圧7.5Vのオレンジ発光となった。発光スペクトルを測定したところ、75%以上がナフタセン誘導体(No.20)からの発光であった。

【0271】また、発光寿命を測定したところ、100mA/cm<sup>2</sup>の定電流駆動での輝度は9000cd/m<sup>2</sup>で輝度半減時間は100時間であった。特に青色発光の強度の低下が大きかった。

【0272】＜実施例4＞[有機ELディスプレイの作製]

ガラス基板としてコーニング社製商品名7059基板を中性洗剤を用いてスクラブ洗浄した。

【0273】この基板にカラーフィルターを形成するため、液晶ディスプレイのカラー化手法として最も一般的な顔料分散型のカラーフィルターの塗布・バナーニング工程を施した。赤、緑、青各色とも1.0~1.5μm

のフィルター膜厚になるように塗布条件を決め、所望のバタニングを行った。赤色用カラーフィルター材を1000rpmで約5秒スピコートし、100℃で3分ブリベークした。露光機でフォトマスクを位置合わせし、20nmの紫外光を30秒照射後に約0.1質量%濃度のTMAH(tetra methyl ammonium hydride)水溶液で現像した。現像時間は約1分であった。この後塗布する別の色のカラーフィルター液に溶解しないように220℃で1時間キュアし、赤色カラーフィルターとした。他の色についても、材料(顔料)が異なるため詳細な形成条件は異なるものの、ほぼ同様な工程を順次行い、カラーフィルターを形成した。

【0274】次に、この後ITOを成膜する面の平坦性を向上させるため、アクリル樹脂のオーバーコート材を塗布し、所望のバタニングを行い、約220℃で1時間キュアして、オーバーコート層を得た。オーバーコート層の厚さは約3μmであった。

【0275】それから透明導電膜としてITOをスパッタ法で約100nm成膜し、フォトリソグラフィでレジストパターンを形成した後に希塩酸でエッチングし、レ

ジストを剥離してITOパターンを得た。

【0276】バタニングしたITO上に絶縁膜としてスパッタ法によりSiO<sub>2</sub>を成膜し、さらに発光がガラス基板側から見える部分以外にSiO<sub>2</sub>が残るようにバタニングして、SiO<sub>2</sub>絶縁膜を約0.1μm厚に形成した。

【0277】次に、実施例1と同様にして、有機EL素子の有機層、陰極および保護層を成膜し、白色、緑色、青色の各ドットを有する有機ELディスプレイを作製した。画素サイズは2mm×2mmで、画素数は各色1ドット

とした。

【0278】これを100mA/cm<sup>2</sup>で定電流駆動して各色の発光を確認したところ、各色の輝度とCIE色度は次のようであった。

【0279】

	輝度 cd/m <sup>2</sup>	CIE x/y
白色	5260	0.32/0.34
赤色	934	0.62/0.34
緑色	2900	0.31/0.50
青色	744	0.12/0.14

【0280】＜実施例5＞[単純マトリックス型有機ELカラーディスプレイの作製]

実施例4と同様に用意した基板をスパッタ装置の基板ホルダーに固定して、Alを約1.5μmの膜厚にスパッタし、連続してTiNを約30nmの膜厚にスパッタしてAlとTiNの積層膜を成膜した。AlとTiNを真空を破らずに連続して成膜しているので、Al層の表面に自然酸化膜が形成されるのが防止され、AlとTiNの良好な接触が得られる。この積層膜をフォトリソグラフィにより、バタニングして低抵抗配線を形成した。

【0281】カラーフィルターとオーバーコート層は実施例4と同様な方法にて形成した。パターンはTiN層の表面を露出させるようにした。

【0282】それから透明導電膜としてのITOパターンも実施例4と同様な方法にて形成した。これでITOと先に形成した低抵抗Al配線が接続され、カラムラインとなる。

【0283】バタニングしたITO上に絶縁膜としてスパッタ法によりSiO<sub>2</sub>を成膜し、さらに発光がガラス基板側から見える部分以外にSiO<sub>2</sub>が残るようにバタニングして、SiO<sub>2</sub>絶縁膜を約0.1μm厚に形成した。これによりガラス基板側から見えない部分での無駄な発光をさけることができる。またこの部分は孔ないし溝になってしまうため、傾斜した部分に蒸着された有機EL層が薄くなり、電流リークの要因となりやすいが、それも防止できる。

【0284】次に、ポリイミドの濃度を15質量%に調整したものを膜厚2μmになるようにスピコートし、145℃で1時間ブリベークし、中間段階のスペーサー膜を形成した。引き続き、ポジレジストを塗布し、所望のフォト・パターンを形成するため露光・現像し、笠状の感光性樹脂体を形成した。ポジレジストの現像時に露出してくるポリイミドの中間段階のスペーサー膜も、現像液でポジレジストに引き続き除去され、最終的なスペーサー形状に形成される。これにより、素子分離構造が形成された。

【0285】次に、実施例1と同様にして、有機EL素子の有機層、陰極および保護膜を成膜し、1画素のサイズが330μm×110μmで、画素数320×240×RGBドットの単純マトリックス型カラーディスプレイを作製した。

【0286】これを線順次駆動したところ、実施例4と同様なCIE色度でカラー発光が得られた。

【0287】＜実施例6＞実施例4において、位置合わせを行ってカラーフィルター間にブラックマトリックスを設置するほかは同様にしてディスプレイを作製した。同様に駆動したところ、実施例4に比べ、よりシャープな発光光が得られた。ブラックマトリックスも顔料分散型の一般的なものを使用した。

【0288】＜実施例7＞実施例4において、アクリル樹脂のオーバーコート層を設けてから、その上にさらにSiO<sub>2</sub>膜を約60nm厚に保護膜を設けるものとするほかは同様にしてディスプレイを作製した。同様に駆動したところ、実施例4と同様の結果が得られた。また素子の耐久性がより向上することがわかった。

【0289】

【発明の効果】本発明によれば、青色発光光が効率よく得られる。さらには青色発光を含めた多色発光への対応が可能で、高輝度で、長寿命の有機EL素子が得られる。さらには、その有機EL素子の優れた特性を生か

し、カラーフィルターとの組み合わせによる多色発光有機ディスプレイを作製することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】実施例中の有機EL素子の構成を示す概略断面図である。

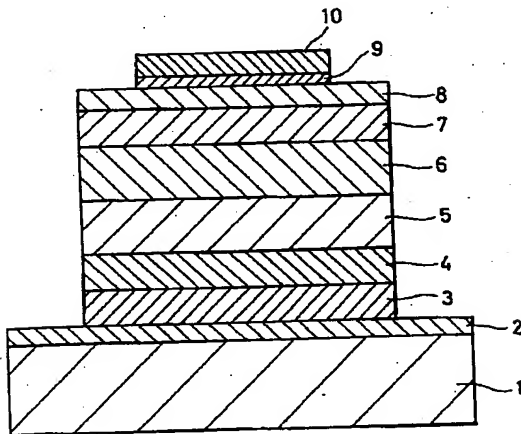
【図2】実施例中の有機EL素子の発光スペクトルを示すグラフである。

【符号の説明】

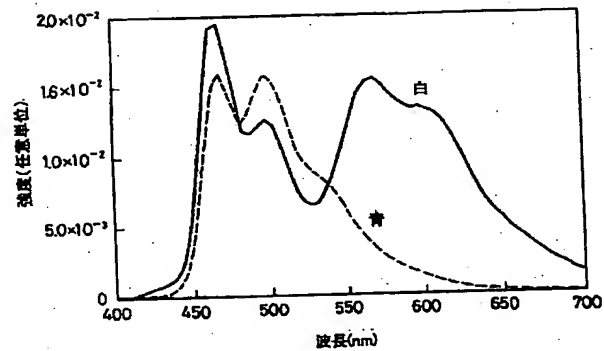
1 基板

- \* 2 陽極
- 3 ホール注入層
- 4 ホール輸送層
- 5 第一の発光層
- 6 第二の発光層
- 7 電子輸送層
- 8 電子注入層
- 9 陰極下層
- \* 10 陰極上層

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.

H05B 33/22  
33/26

識別記号

F I

H05B 33/22  
33/26

ターマコード (参考)

C  
Z

(72)発明者 藤田 徹司  
東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケー株式会社内

(72)発明者 中谷 賢司  
東京都中央区日本橋一丁目13番1号 ティーディーケー株式会社内